

**Untersuchung der
Grundzustands-Relaxation
an optisch gepumpten
 ^{201}Hg -Atomen**

**INAUGURAL-DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
im Fachbereich Physik
der Philipps-Universität Marburg/Lahn**

—

Vorgelegt von
Rudolf Ostermann
aus Hannover

Marburg/Lahn 1977

—



Digitized by the Internet Archive
in 2026

**Untersuchung der
Grundzustands-Relaxation
an optisch gepumpten
 ^{201}Hg -Atomen**

**INAUGURAL-DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
im Fachbereich Physik
der Philipps-Universität Marburg/Lahn**

**Vorgelegt von
Rudolf Ostermann
aus Hannover**

Marburg/Lahn 1977

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg/Lahn als

Dissertation angenommen am .25. 5. 77. .

Tag der mündlichen Prüfung am .4. 7. 1977

Berichterstatter: Prof. Dr. U. Cappeller

Mitberichterstatter: Prof. Dr. S. Großmann



Inhalt:

Seite

Einleitung	6
A. <u>Beschreibung der durch optisches Pumpen erzeugten Ausrichtung im Grundzustand von Hg 201 unter dem Einfluß von äußeren Magnetfeldern und Relaxationsprozessen</u>	9
B. <u>Methoden zur Messung der Relaxationszeitkonstanten</u>	15
B.1. "Statische" Messungen der Zeitkonstanten	15
B.2. "Dynamische" Meßverfahren	18
B.2.1. Ausschalten des magnetischen Wechselfeldes	18
B.2.2. Relaxation ins "Dunkle"	21
B.2.3. Taststrahlverfahren	22
B.3. Eignung der Verfahren zur Messung von Relaxationszeiten bei hoher Teilchendichte im Streugefäß	25
B.4. Zusammenfassung	27
C. <u>Vorbereitende Untersuchungen</u>	28
C.1. Prinzipieller apparativer Aufbau	28
C.2. Erste Messungen von Relaxationszeiten	31
C.3. Voruntersuchungen zur Wahl der endgültigen experimentellen und apparativen Bedingungen	33
C.3.1. Apparative Maßnahmen zur kontrollierten Einstellung von Wandtemperatur und Teilchendichte	33
C.3.2. Untersuchung der Betriebsbedingungen der Lichtquelle	35
C.3.3. Füllung des neuen Streugefäßes	37
C.4. Einstellung und Messung der experimentellen Einflußparameter	39
C.4.1. Frequenz	39
C.4.2. Magnetfeldstärke	39
C.4.3. Wandtemperatur des Streugefäßes	40
C.4.4. Teilchendichte im Streugefäß	40

	Seite
C.5. Dichte-Korrektur	42
C.5.1. Vorüberlegungen	42
C.5.2. Testexperimente zur Dichte-Korrektur	43
<u>D. Durchführung der Untersuchungen</u>	48
D.1. Übersicht	48
D.1.1. Streulichtmessungen	48
D.1.2. Tastlichtmessungen	49
D.2. Die Meßanordnung	50
D.2.1. Aufbau bei Streulichtmessungen	50
D.2.2. Aufbau bei Tastlichtmessungen	50
D.2.3. Steuer- und Meßelektronik	52
D.3. Auswertung der Messungen	52
<u>E. Ergebnisse der Messungen</u>	57
E.1. <u>Magnetfeldabhängigkeit</u>	57
E.1.1. Meßergebnisse	57
E.1.2. Deutung der "Magnetfeldabhängigkeit" durch Einflüsse der Inhomogenität des statischen Magnetfeldes	58
E.1.3. Testexperimente zum Einfluß der Magnetfeldinhomogenität	59
E.1.4. Vergleich zwischen den Meßergebnissen und dem im Anhang abgeschätzten Einfluß der Inhomogenität	63
E.2. <u>Abhängigkeit der Relaxation von der Wandtemperatur des Streugefäßes</u>	65
E.2.1. Meßergebnisse	65
E.2.2. Deutung der Ergebnisse durch die Temperaturabhängigkeit der Adsorptionszeit auf der Wand	66
E.2.3. Bindungsenergie bei der Adsorption	68
E.3. <u>Abhängigkeit der Relaxation von der Quecksilber-Teilchendichte im Streugefäß</u>	69
E.3.1. Meßergebnisse	69
E.3.2. Deutung der Meßergebnisse	72
E.3.2.1. Einflüsse der Magnetfeldinhomogenität bei hohen Dichten	72
E.3.2.2. Einflüsse des Wandanteils der Relaxation bei hohen Dichten	73

	Seite
E.3.2.3. Relaxation durch Stöße im Gas	79
E.3.2.3.1. Stoßpartner	79
E.3.2.3.2. Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung des Alignments von Hg 201 durch Stöße mit Quecksilberatomen im Grundzustand	82
E.3.2.3.3. Überlegungen zum Ursprung der Stoßrelaxation	84
E.3.2.3.4. Beschreibung der Quadrupol-Relaxation	90
E.3.2.3.5. Abschätzung der Konsistenz zwischen den Annahmen über den Relaxationsmechanismus und den Meßergebnissen für Wand- und Gasrelaxation	94
E.3.2.3.6. Deutung der Temperaturabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte	96
<u>F. Zusammenfassung</u>	99
Anhang 1: Zur Magnetfeldabhängigkeit der Relaxation : Einflüsse statischer Inhomogenitäten	101
Anhang 2: Winkel- und Polarisationsabhängigkeit der Streulicht- und Tastlichtsignale	106
<u>Literaturverzeichnis</u>	118

Einleitung

Das optische Pumpen in verdünnten Gasen, 1949 vorgeschlagen (1), (2) und 1952 erstmals experimentell nachgewiesen (3), (4), (5) ist eine Methode zur optischen Ausrichtung von Atomen.¹⁾ Durch Anregung mit resonantem Licht geeigneter Polarisation wird in einem Ensemble von Atomen eine Verteilung über die Unterzustände des Grundzustands oder eines angeregten Zustands erzeugt, die nicht dem thermischen Gleichgewicht entspricht. Diese "Anisotropie" des atomaren Systems spiegelt sich in einer anisotropen Verteilung des absorbierten und dann reemittierten Lichtes wider. Stellt man die Isotropie z.B. durch die Einwirkung eines resonanten magnetischen Wechselfeldes wieder her (Magnetische Resonanz), so ändert sich entsprechend die Verteilung des reemittierten Lichtes, was zum Nachweis des optischen Pumpens benutzt werden kann.

Das optische Pumpen hat sich als empfindliche spektroskopische Methode bei der Bestimmung von atomaren Eigenschaften (z.B. Spin, Kernmomente, g-Faktor) bewährt. Technische Bedeutung gewonnen hat die Ausnutzung der Magnetischen Resonanz zur hochgenauen Messung von statischen Magnetfeldern (Rubidium-Magnetometer (8)) und die Verwendung des optischen Pumpens zur Erzeugung von Besetzungsinversionen bei der LASER-Anregung.

- - - - -

1) Eine Einführung in den Problembereich des optischen Pumpens mit Abdrucken der wichtigsten Veröffentlichungen vor 1959 findet sich bei (6), ein Überblick über die wichtigsten bisher im Zusammenhang mit dem optischen Pumpen erschienenen Arbeiten sowie eine fast lückenlose Liste mit Literaturzitaten bis 1971 bei (7).

Die im Pumpprozeß maximal erreichbare Ausrichtung wird durch das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten bestimmt. Sie kann ein Vielfaches dessen betragen, was man durch thermische Ausrichtung in einem statischen Magnetfeld von der Größenordnung $1\text{K}\phi\text{e}$ erhält.¹⁾

Die der Ausrichtung entgegenwirkenden Prozesse werden als Relaxationsprozesse bezeichnet. Sie können durch die verschiedensten Wechselwirkungen hervorgerufen werden, denen die Atome eines optisch gepumpten Gases ausgesetzt sind.

Als Beispiele seien genannt: Die Einflüsse von homogenen und inhomogenen elektromagnetischen Gleich- und Wechselfeldern, die Wechselwirkung beim Stoß mit der Gefäßwand oder beim Stoß in der Gasphase (mit anderen Atomen, Molekülen, Ionen oder Elektronen), sowie die Wechselwirkung mit dem isotropen - nicht pumpenden - Anteil des optischen Strahlungsfeldes.

Umgekehrt ist es nun im Experiment möglich, aus einer Beobachtung des Relaxationsverhaltens unter verschiedensten Bedingungen Informationen über Art und Anteil der beteiligten Wechselwirkungen zu gewinnen und aus der Änderung des Relaxationsverhaltens Aufschluß über die Abhängigkeit der beteiligten Prozesse von experimentellen Parametern zu erhalten.

1) Cagnac (9) gibt z.B. für das Pumpen im Grundzustand beim Quecksilberisotop $\text{Hg } 201$ (bei selektiver Anregung des $^2\text{P}_1$, $F = 3/2$ Zustands) als Grenzwerte für die Besetzungszahlen n der Grundzustandsniveaus $m = \pm 3/2$ und $m = \pm 1/2$ die Werte $n(3/2) = 1,31$ und $n(1/2) = 0,69$ an, was einem Verhältnis der Besetzungszahlen $n(3/2) : n(1/2) = 1,9$ entspricht. (Dabei ist sehr große Pumplichtintensität und vernachlässigbare Relaxation vorausgesetzt.) Bei einem statischen Magnetfeld von $1\text{K}\phi\text{e}$ und Zimmertemperatur wäre ohne optisches Pumpen das Verhältnis der Besetzungszahlen $n(-3/2) : n(-1/2) = 1 - 10^{-7}$. Die erreichbaren Ausrichtungsgrade beim optischen Pumpen liegen im Experiment im allgemeinen erheblich unter den für große Pumplichtintensität und vernachlässigbare Relaxation zu erwartenden Grenzwerten.

Im allgemeinen wirken mehrere Prozesse gleichzeitig an der Relaxation mit.

Daher ist eine systematische Untersuchung der Abhängigkeit der Relaxation von allen möglichen Parametern unter wohldefinierten Bedingungen notwendig, damit man bei weniger übersichtlichen Verhältnissen z.B. aus der Kenntnis der Einflüsse zweier an der Relaxation beteiligter Prozesse auf die Existenz eines weiteren schließen bzw. dessen Einfluß untersuchen kann.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit einer eingehenden Untersuchung der Relaxation im Grundzustand des Quecksilberisotops $\text{Hg } 201$. Es wird über die Ergebnisse von Messungen der Relaxationszeitkonstanten für das Alignement in Abhängigkeit von der Wandtemperatur des Streugefäßes und vom statischen Magnetfeld berichtet. Außerdem wird die Abhängigkeit der Relaxation von der Quecksilber-Teilchendichte im Streugefäß bei verschiedenen Wandtemperaturen untersucht. Es wird versucht, die beobachteten Effekte zu deuten und - soweit möglich - mit Messungen anderer Autoren zu vergleichen.

Die durchgeführten Untersuchungen können keinen Anspruch auf erschöpfende Behandlung der Grundzustands-Relaxation erheben, zumal ein völlig geschlossenes Bild erst im Zusammenhang mit den entsprechenden Messungen für die Orientierung (Polarisation) entstehen kann. Sie können jedoch eine Ausgangsbasis für weitere Untersuchungen insbesondere der Einflüsse von Fremdgasen auf die Grundzustands-Relaxation bilden.

Wünschenswert wäre es, die vorliegenden Ergebnisse durch entsprechende Messungen für die Orientierung zu ergänzen.

A. Beschreibung der durch optisches Pumpen erzeugten Ausrichtung im Grundzustand von Hg 201 unter dem Einfluß von äußeren Magnetfeldern und Relaxationsprozessen

Die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung eines optisch gepumpten Gases unter der Einwirkung eines statischen Magnetfeldes H_0 und eines magnetischen Wechselfeldes $H_1(t)$ sind bereits ausführlich erörtert (9), (10), (11), (12). Sie sollen hier nur - soweit erforderlich - rekapituliert werden.

Es ist zweckmäßig, zur Beschreibung vom statistischen Operator des atomaren Systems $\mathcal{G}(a)$ für den Grundzustand (a) auszugehen ¹⁾ und dessen Bewegungsgleichung zu betrachten:

$$(A\ 1) \quad i\hbar \frac{d}{dt} \mathcal{G}(a) = [\mathcal{H}, \mathcal{G}(a)] + i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} \mathcal{G}(a) \right)_{\text{incoh.}}$$

a : steht für den Gesamtdrehimpuls (F) des Grundzustandes (Hg 201: $a = F = 3/2$).

Dabei ist $\mathcal{H}$ der Hamiltonoperator, der den Einfluß der magnetischen Gleich- und Wechselfelder beschreibt.

$$\mathcal{H} = -\gamma_K \mu_0 \hbar \vec{H} \cdot \vec{J}, \quad \vec{H} = \vec{H}_0 + \vec{H}_1(t)$$

($\vec{H}$: Magnetfeld, $\vec{J}$: Drehimpulsoperator)

Der zweite Summand in (A 1) beschreibt die zeitliche Änderung von $\mathcal{G}(a)$ unter der Einwirkung der inkohärenten Pump- und Relaxationsprozesse.

Der statistische Operator $\mathcal{G}(a)$ läßt sich nach irreduziblen sphärischen Tensoroperatoren $U_{K,\lambda}(F=a)$ entwickeln. (10) (11)

- - - - -

1) Korrekt müßte zunächst der statistische Operator des gesamten Atoms $\mathcal{G}(At)$ betrachtet werden. Unter gewissen vereinfachenden Annahmen, die von den experimentellen Bedingungen her gerechtfertigt sind, läßt sich das Problem jedoch auf eine Betrachtung von $\mathcal{G}(a)$ reduzieren (11).

Es gilt:

$$(A\ 2) \quad g(a) = \sum_{k,x} g_{k,x}^{(a)} u_{k,x}^+ = \sum_{k,x} g_{k,x}^{*(a)} u_{k,x}$$

$U_{K,x}(F)$: Standard Irreduzibel-Tensoroperatoren (23).

$$(A\ 3) \quad U_{K,x}(F) = \sum_{mm'} (-)^{F-m'} \begin{vmatrix} F, m \\ F, m' \end{vmatrix} \langle F, m; F-m' | K, x \rangle \langle F, m' |$$

mit: $m, m' = \pm 1/2, \pm 3/2$ (Hg 201: $I = 3/2$ Grundzustand: 1S_0 ,
d.h. $F = I$)

$$K = 0, 1, \dots, 2I$$

$$-K \leq x \leq K$$

Die Entwicklungskoeffizienten $g_{k,x}^{(a)}$ werden als Irreduzibel-Tensorkomponenten bezeichnet.

Es gilt:

$$g_{00} = \frac{1}{\sqrt{2I+1}} \quad ; \quad g_{k,x}^{*(a)} = (-1)^x g_{k,-x}^{(a)}$$

Die Bewegungsgleichung für den statistischen Operator (A1) geht bei dieser Beschreibung in ein System von Differentialgleichungen für die komplexen Zahlen $g_{k,x}^{(a)}$ über.

$$g_{k,x}^{(a)} = u_{k,x}^{(a)} + i v_{k,x}^{(a)}$$

Folgende Einschränkungen sollen für die weitere Betrachtung stets gelten:

- 1) Unpolarisiertes Pumplicht, Einstrahlung in Richtung der z-Achse (des statischen Magnetfeldes), dabei selektive Anregung des (Hg 201) 3P_1 $F = 3/2$ Zustands durch Verwendung einer isotopenreinen Hg 198 -Lampe
- 2) Orientierende Wirkung (Boltzmann-Verteilung) des statischen Magnetfeldes vernachlässigbar gegenüber der des Pumplichtes
- 3) Keine Kopplung zwischen Relaxationsprozessen der verschiedenen Orientierungsstufen, Relaxation zur Isotropie hin
- 4) Wechselwirkung des im Pumpprozeß als Zwischenzustand auftretenden angeregten Zustands mit den Magnetfeldern vernachlässigbar gegenüber der des Grundzustandes

Unter diesen Voraussetzungen ergeben sich für ungrade K homogene Differentialgleichungssysteme, die nur die triviale Lösung $g_{k,x}^{(a)} \equiv 0$ besitzen. Man kann sich also auf eine Betrachtung von $K = 2$ beschränken (11), (13).

Das Gleichungssystem für die Tensorkomponenten nimmt für ein linear polarisiertes magnetisches Wechselfeld $\vec{H}_1(t) = H_1 \cos \omega t \cdot \vec{e}_x$, d.h. $\vec{H} = (H_1 \cos \omega t, 0, H_0)$ unter den genannten Bedingungen die Form an:

(A 4)

$$\frac{d}{dt} g_{1,0}^{(a)} = \frac{1}{\theta} - \frac{1}{\tau_{2,0}} g_{2,0}^{(a)} - i \frac{\omega_1 \sqrt{6}}{2} \cos \omega t (g_{2,1}^{(a)} + g_{2,-1}^{(a)})$$

$$\frac{d}{dt} g_{2,\pm 1}^{(a)} = - \left(\frac{1}{\tau_{2,1}} \pm i \omega_0^{(a)} \right) g_{2,\pm 1}^{(a)} - i \frac{\omega_1 \sqrt{6}}{2} \cos \omega t \left(\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} g_{2,\pm 2}^{(a)} + g_{2,0}^{(a)} \right)$$

$$\frac{d}{dt} g_{2,\pm 2}^{(a)} = - \left(\frac{1}{\tau_{2,2}} \pm i 2 \omega_0^{(a)} \right) g_{2,\pm 2}^{(a)} - i \omega_1 \cos \omega t g_{2,\pm 1}^{(a)}$$

$$g_{k,x}^{(a)} \equiv 0 \quad \text{für } k = 1, 3; \quad g_{0,0}^{(a)} = \frac{1}{\sqrt{2a+1}} = \frac{1}{2}$$

$$\omega_0^{(a)} = \gamma_{2a1}^{(a)} H_0; \quad \omega_1^{(a)} = \gamma_{2a1}^{(a)} H_1$$

Da nur für $K = 2$ nicht verschwindende Lösungen für die Tensorkomponenten auftreten, wird im folgenden stets der Einfachheit halber bei den $\tau_{2,x}$ der Index 2 weggelassen.

Es gilt:

$$P = \frac{1}{\theta} = \frac{4}{25 T_p}; \quad \frac{1}{\tau_0} = \frac{26}{25 T_p} + \frac{1}{T_0}; \quad \frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{T_p} + \frac{1}{T_1};$$

$$\frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{T_p} \left(1 - \frac{3}{25 (1 + (2\omega_0^{(b)} T_s)^2)} \right) + \frac{1}{T_2}$$

$$\omega_0^{(b)} = \gamma_{2a1}^{(b)} \cdot H_0; \quad \omega_1^{(b)} = \gamma_{2a1}^{(b)} \cdot H_1$$

T_s : Lebensdauer des angeregten Zustands (b)

Ohne magnetisches Wechselfeld, d.h. für $\omega_1 = 0$, ergeben sich die Lösungen:

$$\begin{aligned}
 (A\ 5) \quad g_{2,0}^{(a)}(t) &= g_{2,0}^{(a)}(0) e^{-\frac{t}{\tau_0}} + \frac{\tau_0}{\Theta} \\
 g_{2,\pm 1}^{(a)}(t) &= g_{2,\pm 1}^{(a)}(0) e^{\pm i\omega_0 t} e^{-\frac{t}{\tau_1}} \\
 g_{2,\pm 2}^{(a)}(t) &= g_{2,\pm 2}^{(a)}(0) e^{\pm i2\omega_0 t} e^{-\frac{t}{\tau_2}}
 \end{aligned}$$

Ohne Wechselfeld stellt sich $g_{2,0}^{(a)}$ mit der Zeitkonstanten τ_0 auf einen Gleichgewichtswert τ_0/Θ ein.

Für kleine Pumplichtintensität und kurze Relaxationszeit T_0 ($1/T_p \ll 1/T_0$) ist $\tau_0/\Theta \approx T_0/T_p$. Für lange Relaxationszeit T_0 und große Pumplichtintensität ist der Grenzwert $2/13 \approx 0,15$.

Für $\omega_1 = 0$ ist das Differentialgleichungssystem im Falle des linear polarisierten Wechselfeldes nicht geschlossen lösbar. Stationäre Lösungen können durch Fourier-Reihenansatz gewonnen werden (13). Die Fourier-Koeffizienten der Lösungsfunktionen lassen sich in einem bei (13) beschriebenen numerischen Iterationsverfahren gewinnen. Es lassen sich dann die bei Linear-Polarisation des Feldes zu beobachtenden "feineren" Effekte wie Frequenzverschiebung der magnetischen Resonanz, subharmonische Resonanzen (13) bzw. "Mehrquantenübergänge" (14) und zeitliche Modulationen der Tensorkomponenten berechnen (15). Bei schwachen Wechselfeldern ($q = H_1/H_0 \ll 1$) verschwinden diese Effekte. Es ist dann zulässig, statt das Differentialgleichungssystem für ein linearpolarisiertes H_1 -Feld zu lösen, das Wechselfeld als Überlagerung zweier zirkularpolarisierter Felder zu betrachten. Man kann dann in das (A 4) entsprechende Differentialgleichungssystem für Zirkularpolarisation eingehen und eine Lösung für den resonanten zirkularen Anteil des H_1 -Feldes unter Vernachlässigung des nichtresonanten Anteils durch Transformation auf das mitrotierende Koordinatensystem gewinnen (13), (16).

Als stationäre Lösungen erhält man (13):

$$g_{2,0}^{(a)} = a_0(\omega)$$

$$(A 6) \quad g_{2,1}^{(a)}(t) = a_1(\omega) e^{-i\omega t}$$

$$g_{2,2}^{(a)}(t) = a_2(\omega) e^{-i2\omega t}$$

Dabei ist (13):

$$(A 7) \quad a_0(\eta) = \frac{P \tau_0}{1 + \frac{3q^2}{4\delta_0\delta_2} \left(\frac{1}{N} + \frac{1}{N^*} \right)}$$

$$\text{mit: } N(\eta) = 1 + \frac{(1-\eta)}{\delta_1} i + \frac{q^2}{2\delta_1\delta_2 \left(1 + 2i \frac{(1-\eta)}{\delta_2} \right)}$$

$$\delta_i = \frac{1}{\omega_0^{(i)} \tau_i}; \quad \eta = \frac{\omega}{\omega_0}; \quad q = \frac{H_1}{H_0}$$

$$(A 8) \quad a_1(\eta) = -i \cdot \sqrt{\frac{3}{4}} \cdot \frac{q}{\delta_1} \cdot \frac{a_0(\eta)}{N(\eta)}$$

$$(A 9) \quad a_2(\eta) = -\frac{i}{\sqrt{2}} \cdot \frac{q}{\delta_2} \cdot \frac{1}{\frac{2i(1-\eta)}{\delta_2} + 1} \cdot a_1(\eta)$$

Die Form von $a_0(\eta)$ ($\eta = \omega/\omega_0$) ist in Abbildung 1 für verschiedene q -Werte dargestellt.

Für ein linearpolarisiertes Wechselfeld größerer Feldstärke muß als stationäre Lösung angesetzt werden (13):

$$(A 10) \quad g_{2,x}^{(a)}(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} g_{2,x}^{(n)} e^{i\omega n t} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} (\alpha_n^{(x)} + i\beta_n^{(x)}) e^{i\omega n t}$$

$$\text{mit: } \alpha_{-n}^{(x)} = \alpha_n^{*(x)}, \quad \beta_{-n}^{(x)} = \beta_n^{*(x)}, \quad \beta_n^{(0)} = 0$$

Der Fourier-Koeffizient $g_{2,0}^{(0)}$ ist für verschiedene H_1 -Feldstärken (q -Werte) als Funktion von η in Abbildung 2 gezeigt. Für kleine q -Werte stimmen die Kurven im wesentlichen mit den $a_0(\eta)$, den Lösungen für zirkularpolarisiertes Feld, überein.

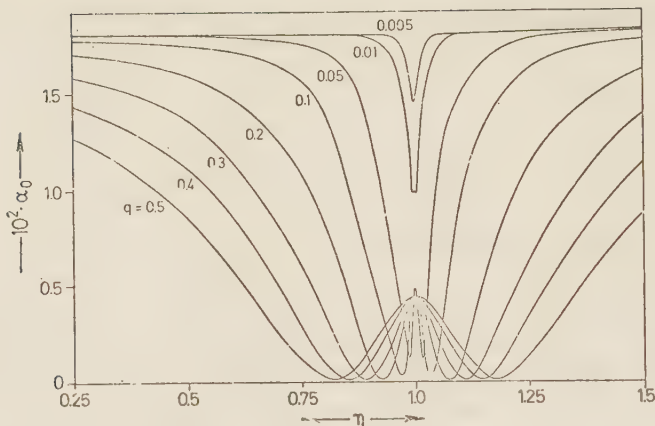


Abb. 1 :
zirkularpolarisiertes H_1 -Feld : magnetische Resonanz

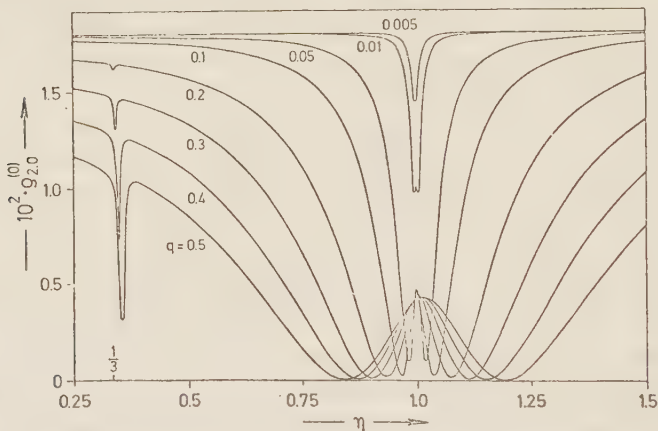


Abb. 2 :
linearpolarisiertes H_1 -Feld: magnetische Resonanz

Die in den Abbildungen 1 und 2 dargestellten Kurven sind für $\tau_0 = \tau_1 = \tau_2 = 10^{-2}$ sek berechnet (13). Bei längeren Relaxationszeiten τ_i wird die Sättigung bereits bei geringeren q -Werten erreicht, für die z.B. im Fall des linearpolarisierten Wechselfeldes eine Frequenzverschiebung der magnetischen Resonanz noch vernachlässigbar ist. Die subharmonischen Resonanzen treten dann zwar bereits bei geringeren q -Werten hervor (H_1 linearpol.), sind jedoch wegen der geringeren Linienbreite der Hauptresonanz für kleine q deutlich von dieser getrennt. Sie beeinflussen deren Form erst bei großen q -Werten, für die eine Überlappung der beiden Resonanzen auftritt.

B Methoden zur Messung der Relaxationszeitkonstanten

Die in den Gleichungen (A 4) definierten Zeitkonstanten $\tau_K^{(1)}$ bestimmen sowohl das Zeitverhalten der Tensorkomponenten im nichtstationären Fall als auch die Form der Lösungen im stationären Fall.

Dementsprechend hat man zwei prinzipiell verschiedene Möglichkeiten, die Zeitkonstanten zu messen und zwar indirekt aus der Form der stationären Lösungen oder direkt aus der Beobachtung des Einstellvorganges der Tensorkomponenten bei Änderung der "Umweltbedingungen" (z.B. Ausschalten des H_1 -Feldes oder Einschalten des Pumplichtes).

Diese von Cagnac (9) als statisches bzw. dynamisches Meßverfahren bezeichneten Methoden werden im folgenden erläutert.

B 1. Statische Messungen der Zeitkonstanten

Von den stationären Lösungen des Gleichungssystems (A 4) soll nur die Komponente $g_{2,0}^{(a)} \approx a_0(\omega)$ betrachtet werden. Der Gleichstromanteil des Streulichtes, das man unter geeignetem Winkel mit geeigneter Polarisationsempfindlichkeit beobachtet (s. dazu Anhang 2), enthält einen zu $g_{2,0}^{(a)}$ proportionalen Anteil (11).

Variiert man die Frequenz $\nu = \omega/2\pi$ des H_1 -Feldes quasi-statisch um die Resonanz ($\nu_0 = \omega_0/2\pi = \gamma H_0$), so erhält man aus der Änderung der Streulichtintensität magnetische Resonanzkurven entsprechend den Abbildungen 1 bzw. 2 für den Fall der linearen bzw. zirkula-

- - - - -

1) Da nur Tensorkomponenten mit $K = 2$ betrachtet werden, wird zur Vereinfachung statt $\tau_{K,K}$ nur τ_K geschrieben.

ren Polarisation im Wechselfeld. Strenggenommen gilt für lineare Polarisation die Lösung $S_{2,0}^{(a)} \approx S_{2,0}^{(o)}$ und nur für Zirkularpolarisation $S_{2,0}^{(a)} = a_0(\omega)$.

Sieht man jedoch von der Resonanzverschiebung und dem Auftreten der subharmonischen Resonanzen ab, so wird der Verlauf der magnetischen Resonanzen bei linear-polarisiertem H_1 -Feld bis zum Erreichen der Sättigung¹⁾ durch $a_0(\omega)$ noch gut wiedergegeben. Insbesondere erlaubt die gute Übereinstimmung in der Umgebung von $\eta = 1$ ($\eta = \omega/\omega_0$) die Verwendung der Gleichung (A 7) für $a_0(\eta)$ auch im Falle der Linearpolarisation zur Bestimmung des Verhältnisses der Zeitkonstanten.

Für $\eta = 1$ gilt

$$a_0(1) = \frac{P \tau_0}{1 + \frac{3}{4} \frac{q^2}{\delta_2 \delta_0} \cdot \frac{2}{(1 + \frac{q^2}{2 \delta_1 \delta_2})}} \quad (\text{B } 1)$$

(siehe Abbildung 3)

Dies kann bei starkem H_1 -Feld zur Bestimmung des Verhältnisses τ_0/τ_1 ausgenutzt werden.

Es gilt:

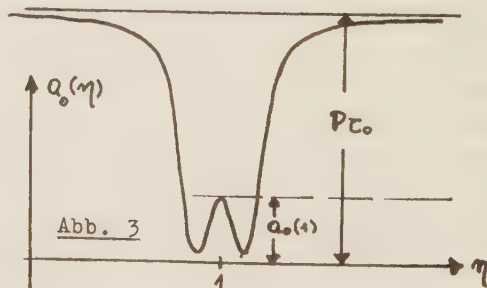
$$a_{0 \max} = a_0(\pm \infty) = P \tau_0$$

bei starkem H_1 -Feld: $q^2 \gg \delta_1 \delta_2$

$$a_0(1) \approx \frac{P \tau_0}{1 + 3 \frac{\tau_0}{\tau_1}}$$

$$\frac{a_{0 \max}}{a_0(1)} \approx 1 + 3 \frac{\tau_0}{\tau_1}$$

$$\frac{\tau_0}{\tau_1} \approx \frac{1}{3} \left(\frac{a_{0 \max}}{a_0(1)} - 1 \right)$$



1) "Sättigung" ist bei derjenigen Feldstärke des magnetischen Wechselfeldes erreicht, bei der für mindestens einen Wert von η die Ausrichtung völlig zerstört wird (d.h. $S_{2,0} \approx a_0(\eta) \approx 0$).

Weiter gilt:

$$\frac{P_{\tau_0} - a_0(1)}{a_0(1)} = \frac{3 q^2}{2 \delta_0 \delta_2} \cdot \frac{1}{1 + \frac{q^2}{2 \delta_1 \delta_2}} =: S \quad (B 2)$$

$q \rightarrow 0 : \dots$		$q \rightarrow \infty : \dots$ (d.h. $q^2 \gg \delta_1 \delta_2$)
$S \approx \frac{3 q^2}{2 \delta_0 \delta_2}$		$S \approx \frac{3 \delta_1}{2 \delta_0}$
$\approx \frac{3 q^2 \omega_0^2}{2} \tau_0 \tau_2$		$\approx \frac{3 \tau_0}{2 \tau_1}$

Die oben definierte Größe S, gegenüber q^2 aufgetragen, strebt für große Werte von q gegen einen konstanten Wert, aus dem man das Verhältnis τ_0/τ_1 entnehmen kann. Aus dem Wert der Steigung für kleine q erhält man das Produkt der Zeitkonstanten $\tau_0 \tau_2$.

Es ist also prinzipiell möglich, aus der Form der magnetischen Resonanzen bzw. aus dem Amplitudengang Verhältnisse von Zeitkonstanten (oder Produkte) zu bestimmen. Alle drei Zeitkonstanten einzeln lassen sich so nicht bestimmen (es sei denn, daß man $\tau_1 = \tau_2$ voraussetzt)¹⁾. τ_0 muß direkt durch Beobachtung des Zeitverlaufs, z.B. beim Ausschalten des H_1 -Feldes, gemessen werden.

Der Hauptnachteil des Verfahrens liegt aber darin, daß es nicht die Verhältnisse der eigentlichen Zeitkonstanten T_0, T_1, T_2 , sondern nur die der entsprechenden τ_i ($1/\tau_i \approx 1/T_i + 1/T_p$, $i = 0, 1, 2$) zu messen gestattet.

1) Für $\tau_1 = \tau_2$ kann man nach (9) die Zeitkonstante τ_2 aus der Halbwertsbreite der magnetischen Resonanz im Grenzwert $q \rightarrow 0$ entnehmen. Es gilt:

$$\lim_{q \rightarrow 0} (L^2) = (\pi \tau_2)^{-2}, \quad L = \psi_0 - \psi_{1/2}$$

Wollte man die Verhältnisse der echten Relaxationszeiten bestimmen, so müßte man "Reihenuntersuchungen" der Signalform über einen weiten Intensitätsbereich des Pumplichtes durchführen. Bei schwachen Intensitäten wären dann sehr große Meßzeiten erforderlich. Die statische Methode wurde daher nur in einer Voruntersuchung zur Messung der Magnetfeldabhängigkeit des Verhältnisses τ_0/τ_1 angewandt.

B 2. Dynamische Meßverfahren

B 2.1. Ausschalten des magnetischen Wechselfeldes

Wenn man nach Zerstörung des Alignments durch ein resonantes magnetisches Wechselfeld ($H_1(t)$) dieses ausschaltet, so baut sich entsprechend der Gleichung ($A \neq 0$) die Ausrichtung mit der Zeitkonstanten τ_0 wieder auf, was sich als Änderung in der Intensität des gestreuten Lichtes oder als Änderung in der Absorption für "Resonanzlicht" (s. Taststrahlverfahren) nachweisen läßt. Auf diese Weise kann man die Zeitkonstante τ_0 bestimmen, wenn man die experimentellen Bedingungen so wählt, daß die Meßgröße proportional zu $S_{2,0}^{(a)}$ ist. Entsprechend erhält man τ_1 bzw. τ_2 , wenn man die zeitliche Änderung der Tensorkomponenten $S_{2,1}^{(a)}$ und $S_{2,2}^{(a)}$ bzw. dazu proportionale Meßgrößen allein mißt.¹⁾ Im allgemeinen Fall wird man nach Ausschalten des H_1 -Feldes einen zeitlichen Verlauf des Streulichtes²⁾ oder der Absorption von Resonanzlicht erhalten, in dem sich das Zeitverhalten aller drei Tensorkomponenten $S_{2,0}^{(a)}$, $S_{2,1}^{(a)}$, $S_{2,2}^{(a)}$ widerspiegelt. Durch geeignete Wahl der experimentellen Parameter (Polarisation, Beobachtungsrichtung, Frequenzselektivität im Nachweis) lassen sich jedoch die drei Zeitkonstanten unabhängig voneinander messen.

1) Die Tensorkomponenten $S_{2,1}^{(a)}$ und $S_{2,2}^{(a)}$ selbst sind komplexe Größen. Die reelle Meßgröße kann also jeweils nur deren Real- oder Imaginärteil bzw. eine Kombination aus beiden sein.

2) Bei Streulichtbeobachtung nur $S_{2,0}^{(a)}$, $S_{2,2}^{(a)}$.

Die Beziehungen zwischen den Meßgrößen und den Tensorkomponenten werden im Anhang (Anhang 2) für die im Experiment gewählten Bedingungen angegeben (17). Bei der Beobachtung der Relaxationserscheinungen im gestreuten Licht wird zunächst wieder nur eine Zeitkonstante beobachtet, die noch die Pumpzeitkonstante enthält ($1/\tau_i \approx^1 1/T_i + 1/T_p$, $i = 0, 2$).

Für die Bestimmung der echten Relaxationszeiten T_i muß man Messungen bei verschiedenen Pumplichtintensitäten durchführen. Dies geschieht üblicherweise durch Einbringen von Abschwächern in den Pumplichtstrahlengang. Die Pumplichtintensität I_p wird dabei relativ zur Eingangs- (Lampen-) Intensität I_0 jeweils in festem Verhältnis geschwächt. Die Relaxationszeit T_i ergibt sich aus der Extrapolation der gemessenen τ_i -Werte auf die Pumplichtintensität $I_p = 0$ ($I_p \sim 1/T_p$). Wegen des Zusammenhangs $1/\tau_i \approx 1/T_i + 1/T_p$, d.h. $1/\tau_i \approx 1/T_i + C \cdot I_p/I_0$ ergibt sich bei Auftragung der gemessenen Relaxationsraten $1/\tau_i$ gegenüber der relativen Pumplichtintensität I_p/I_0 eine Gerade, deren Schnittpunkt mit der Ordinate den Wert $1/T_i$ liefert (s. Abbildung 4). Hat man so die Relaxationszeit T_i bestimmt, kann man auch die Pumpzeitkonstanten für die jeweilige relative Intensität I_r ($I_r = I_p/I_0$) berechnen ($1/T_p(I_r) = 1/\tau_i(I_r) - 1/T_i$). Da man während der Messungen zu einer "Extrapolationsreihe" eine konstante Eingangsintensität I_0 voraussetzen muß, können schon geringe Lampenschwankungen erhebliche Fehler bei der Bestimmung der Zeitkonstanten hervorrufen. Dabei ist nicht die integrale Lampenintensität I_0 entscheidend, die während der Messungen mit Hilfe eines Photomultipliers überwacht und entsprechend berücksichtigt werden konnte, sondern die

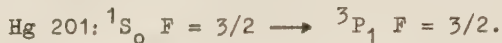
1) Genauer gilt:

$$1/T_2 + 1/T_p \geq 1/\tau_2 \geq 1/T_2 + 1/T_p - 0,03/T_p \quad (H_0 \geq 2\phi e)$$

$$1/\tau_0 = 1/T_0 + 1,04/T_p$$

Die Zeitkonstante T_1 ist im Streulicht nicht beobachtbar (vgl. Anhang 2).

Intensität im Bereich der Absorptionslinie des zum Pumpen benutzen Überganges:



Eine Änderung der Brennbedingungen der Hg 198-Lampe (Änderung des Linienprofils z.B. durch Selbstumkehr) kann daher - ohne daß sich die integrale Intensität wesentlich ändert - die Pumpzeitkonstante erheblich beeinflussen (vgl. Abschnitt C 3).

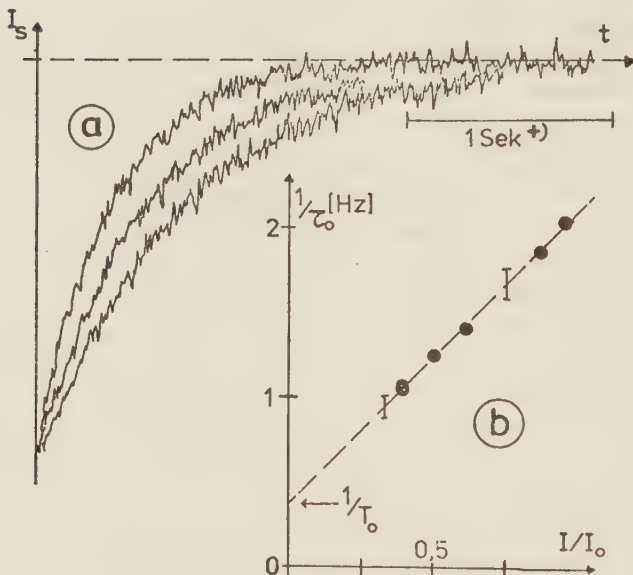


Abb. 4 :

(a): "Rückpumpkurven": Verlauf der Streulichtintensität beim Wiederaufbau des Alignments nach Zerstörung durch ein starkes resonantes Wechselfeld, bei unterschiedlichen Pumplichtintensitäten gemessen. Wegen der besseren Übersicht sind nur drei der zu einer Extrapolationsreihe gehörenden Meßkurven eingezeichnet.

(b): Zugehörige Geraden-Extrapolation auf $I/I_0 = 0$ für die Bestimmung der Relaxationsrate $1/T_0$

+) Die Zeiteinheit Sekunde wird, um Verwechslungen mit später auftretenden Indices zu vermeiden, durchgängig mit dem Symbol sek bezeichnet.

B 2.2: Relaxation ins Dunkle

Es wurden schon früh Versuche unternommen, die Relaxationszeitkonstanten unverfälscht durch die Pumpzeitkonstante zu messen (18). Es wurde vorgeschlagen, die Relaxation "ins Dunkle" zu messen. Dies Verfahren ist vom Prinzip her sehr einfach. Kein magnetisches Wechselfeld wird benötigt. (Allerdings läßt sich auch nur T_0 mit diesem Verfahren messen).

Durch einen Verschluß wird das Pumplicht plötzlich ausgeschaltet. Die Ausrichtung der Atome baut sich mit der Zeitkonstanten T_0 ab. Nach einer Zeit Δt wird der Verschluß wieder geöffnet. Der Wiederaufbau des Alignments geschieht mit der Zeitkonstanten τ_0 ($1/\tau_0 = 1/T_0 + 1/T_p$), jedoch nicht vom Ausrichtungsgrad "Null", sondern von dem Wert ausgehend, bis zu dem es während der Zeit Δt zerfallen war. Durch Variation der "Verschlußzeit" Δt tastet man so mit den Startpunkten der "Rückpumpkurven" die Relaxationskurve ab. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 5 skizziert.

Das Verfahren hat verschiedene Nachteile, der entscheidende ist die Tatsache, daß man wieder auf eine absolute Konstanz der Lichtquelle über längere Zeit hinweg angewiesen ist. Die Meßzeiten sind sehr groß,

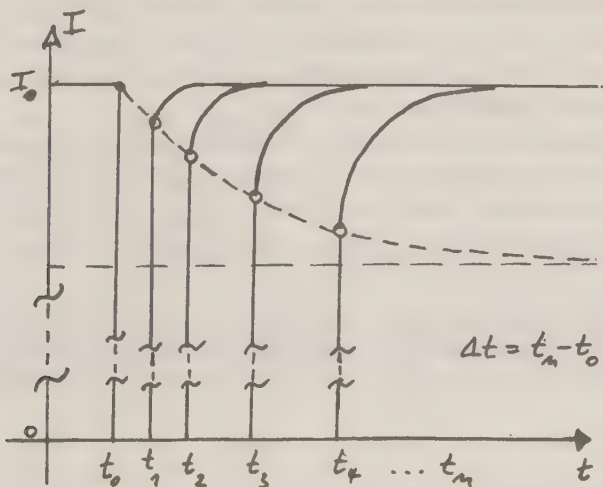


Abb. 5:

da man vor jedem Durchgang die Einstellung des Gleichgewichts beim Pumpen abwarten muß.

B 2.3. Taststrahlverfahren

Die Absorption von Resonanzlicht durch ein optisch gepumptes Gas ist abhängig vom Ausrichtungsgrad der Atome im Grundzustand.

Die Intensität des durchgelassenen Lichtes ändert sich entsprechend der Ausrichtung, was zur Beobachtung der magnetischen Resonanzen und auch der Relaxationsphänomene im transmittierten Licht ausgenutzt werden kann (19). Dazu ist prinzipiell nur ein Lichtstrahl notwendig. Da dieser jedoch zum wirksamen Pumpen möglichst hohe Intensität haben sollte, würde die Größenordnung der Zeitkonstanten im wesentlichen durch die Pumpzeitkonstante bestimmt und es wäre wieder ein langwieriges Extrapolationsverfahren notwendig, um die eigentlichen Relaxationszeitkonstanten zu bestimmen.

Es bietet sich daher die Verwendung zweier Lichtstrahlen an, von denen der eine (das Pumplicht) möglichst hohe Intensität und der zweite (das Tastlicht) möglichst geringe Intensität haben sollte.¹⁾

Zur Beobachtung der Relaxation wird das Pumplicht durch einen Photoverschluß "abgeschaltet". Entsprechend der Abnahme der Ausrichtung ändert sich die Transparenz des Gases für den Taststrahl, so daß man durch Abfrage des transmittierten Lichtes den zeitlichen Verlauf der Relaxation beobachten kann.

Der einzige die eigentliche Relaxationszeitkonstante T noch verfälschende Anteil besteht dann in der "Pumpzeitkonstanten" des Tastlichtes ($1/\tau = 1/T + 1/T_{\text{Tast}}$). Diese kann im Normalfall so groß gewählt werden, daß

- - - - -
1) Bezüglich der Wahl der Winkelstellung zwischen Pump- und Tastlicht und der Polarisation im Tastlicht bzw. im Nachweis sei auf den Anhang (Anhang 2) verwiesen.

ihr Kehrwert (die entsprechende Pumprate) gegenüber der Relaxationsrate $1/T$ zu vernachlässigen ist.

Zur Messung der Zeitkonstanten T_0 wird ohne Verwendung eines magnetischen Wechselfeldes nach Abschalten des Pumplichtes die Änderung des zeitlichen Mittelwertes der transmittierten Intensität beobachtet¹⁾. Auf einem hohen konstanten Untergrund erhält man entsprechend Gleichung (A5, $\chi=0$) als Zeitverlauf eine einfache Exponentialfunktion mit der Zeitkonstanten T_0 . Der Grenzwert, den der Pegel des transmittierten Lichtes bei abgeschaltetem Pumplicht annimmt, ist durch die Absorption des Gases im isotropen Zustand bestimmt. Der "Signalhub" ist abhängig vom erreichbaren Ausrichtungsgrad und von der Teilchendichte im Gas. Er kann einige Prozent betragen²⁾.

Da der ungeschwächt durchgelassene Anteil des Tastlichtes keine Signalinformation enthält, jedoch seine Fluktuationen voll in das Signal eingehen, ist die Anwendbarkeit des Verfahrens auf nicht zu geringe Gasdichten beschränkt.

Zur Messung der Zeitkonstanten T_1 und T_2 ist das Vorhandensein des H_1 -Feldes notwendige Voraussetzung, da erst durch die im magnetischen Wechselfeld wirksame Kopplung zwischen den verschiedenen Tensorkomponenten mit $\chi = 0, 1, 2$ (DGLS. A4) die Komponenten $\mathcal{G}_{2,+1}^{(a)}$ und $\mathcal{G}_{2,-2}^{(a)}$ von "Null" verschiedene Werte annehmen.

Schaltet man gleichzeitig Pumplicht und Wechselfeld aus, so beobachtet man bei geeigneter Polarisation¹⁾ im Tastlicht Modulationen der Frequenz $\omega_0/2\pi$

1) s. Fußnote 1) , Seite 22

2) Durch additive Beimischung eines geeigneten "Offsets" am Eingang des Meßverstärkers läßt sich der konstante Signalanteil kompensieren und der die Information enthaltende Anteil allein weiter verarbeiten. Wie gut dies möglich ist, hängt von der Stabilität der Tastlicht-Lampe ab.

bzw. $2\omega_d/2\pi$, die mit der Zeitkonstanten T_1 bzw. T_2 ausklingen. Durch Frequenzfilterung lassen sich diese Signale vom Tastlichtuntergrund abtrennen und selektiv verstärken.

Die Einhüllenden der - nach Ausschalten von Pumplicht und H_1 -Feld - abklingenden Modulationen sind wieder (s. Gleichungen A 5, $\nu = \pm 1, \pm 2$) einfache Exponentialfunktionen mit den Zeitkonstanten T_1 bzw. T_2 , die als gemeinsamen Grenzwert den Wert der im isotropen Zustand durchgelassenen Intensität annehmen (s. schematische Darstellung in Abbildung 6).

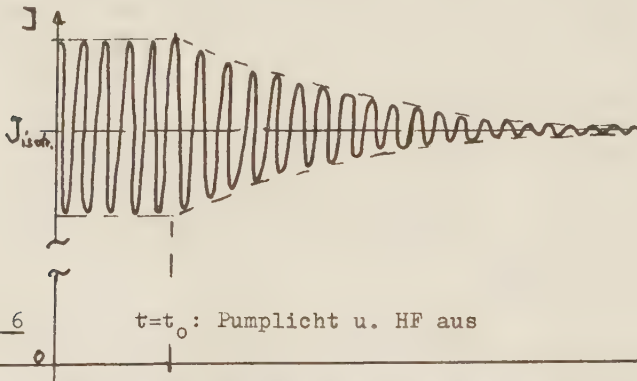


Abb. 6

Bei der frequenzselektiven Verstärkung des modulierten Signalanteiles wird der konstante Untergrund automatisch abgetrennt, ohne daß man dem Signal irgendwelche "Gleichstromkomponenten" zur Kompensation des Untergrundes beimischen müßte. Dies ist ein wesentlicher Vorteil des frequenzselektiven Nachweisverfahrens. Man kann das die gewünschte Information enthaltende Signal allein weiter verarbeiten. Vom Rauschen abgesehen gelangt kein störender konstanter Untergrund mit zur Verstärkung. Das Signal-zu-Rauschverhältnis wird beim frequenzselektiven Nachweis durch die Begrenzung des Rauschspektrums erheblich verbessert.

B 3. Eignung der Verfahren zur Messung von Relaxationszeiten bei hoher Teilchendichte im Streugefäß

Bei hohen Dichten ist die Streulichtbeobachtung der Relaxation nicht unproblematisch. Wegen der zunehmenden Absorption des Quecksilberdampfes in der Zelle nimmt die Pumplichtintensität vom Rand her ins Innere der Zelle hin ab. Die Pumpzeitkonstante wird damit ortsabhängig. Man kann nicht mehr im ganzen beobachteten Volumen die gleiche Pumpzeitkonstante annehmen und genauso wenig den gleichen Ausrichtungsgrad für die Atome.¹⁾ Das bedeutet aber, daß man dann bei Streulichtbeobachtung der Relaxation über Bereiche mit deutlich verschiedenen Zeitkonstanten τ_0 mittelt.

Dies ist beim Taststrahlverfahren (Taststrahl senkrecht zum Pumplicht) nicht der Fall, solange die Pumpzeitkonstante des Tastlichtes so groß ist, daß ihr Einfluß auf die Relaxation vernachlässigt werden kann (für $1/T_{\text{Tast}} \ll 1/T$ spielt die Änderung der Tastlichtpumpzeitkonstanten längs des Absorptionsweges keine Rolle). Über den ganzen ausgeleuchteten Bereich muß das Pumplicht bei "Kreuzstrahlanordnung" ($\approx 90^\circ$ zwischen Tastlicht und Pumplicht)

1) Ohne Wechselfeld stellt sich $S_{2,0}^{(a)}$ beim optischen Pumpen auf den Gleichgewichtswert P ein.

$$P = \frac{4T_0}{25(T_0 + T_p)} \quad \text{Da } 1/T_p \sim I_p \text{ ist, gilt:}$$

$$1/T_p(z) \sim I_p(z) = I_0 \cdot \exp(-\alpha z) \quad \alpha: \text{Absorptionskoeffizient}$$

für $T_p \leq \tau_{\text{Diff}}$ folgt dann:

$$P = \frac{4T_0}{25(T_0 + \frac{C \exp(\alpha z)}{I_0})}$$

z : Absorptionsweg

I_0 : Eingangsintensität

τ_{Diff} : Diffusionszeit für eine Strecke, vergleichbar mit der Kantenlänge der Zelle

etwa den gleichen Absorptionsweg bis zu dem schmalen "Kanal" zurücklegen, der vom Tastlichtbündel durchstrahlt wird. Daher kann im "abgetasteten" Volumen eine einheitliche Pumpzeitkonstante und ein einheitlicher Ausrichtungsgrad angenommen werden. Solange das Pumplicht vorhanden ist, wird bei hohen Dichten in der Zelle keine homogene Verteilung der ausgerichteten Atome vorhanden sein. Längs der Pumplichtrichtung (z-Achse) nimmt der Ausrichtungsgrad entsprechend der Absorption des Pumplichtes ab.¹⁾ Wenn das Pumplicht ausgeschaltet wird, stellt sich durch Diffusion eine homogene Verteilung ein, sofern die Relaxationszeit genügend groß gegenüber der für den Diffusionsprozeß charakteristischen Zeitkonstanten ist. Die Zeit ($\tau_{\text{Diff.}}$), in der das mittlere Verschiebungsquadrat $\langle x^2 \rangle$ eine Größe erreicht, die dem Quadrat der Kantenlänge der Zelle entspricht, kann als brauchbarer Schätzwert für die Einstellzeit einer homogenen Verteilung angesehen werden. Für eine Teilchendichte $n_{\text{max}} = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ gilt als Abschätzung für die Diffusionszeit $\tau_{\text{Diff.}} \approx 0,02 \text{ sek.}$ Da im Experiment die Dichte immer kleiner als n_{max} war, ist die für n_{max} abgeschätzte Diffusionszeit eine obere Grenze für die Einstellzeit einer homogenen Verteilung der ausgerichteten Atome nach Ausschalten des Pumplichtes.

Die Dichteabhängigkeit der Relaxationszeiten wurde nur bei Wandtemperaturen $\Theta_w \geq 135^\circ \text{C}$ untersucht, die dabei beobachteten Zeitkonstanten waren größer als 400 msec, also mindestens um einen Faktor 20 größer als $\tau_{\text{Diff.}}(n_{\text{max}})$.

Man kann also beim Taststrahlverfahren für die Beobachtung der Relaxation bei abgeschaltetem Pumplicht immer annehmen, daß die ausgerichteten Atome homogen über das ganze Volumen verteilt sind.

- - - - -

1) siehe Fußnote 1) auf Seite 25

B 4. Zusammenfassung

Das Taststrahlverfahren zur Messung der Relaxationszeiten ist - zumindest bei nicht zu geringer Dichte im Gas - allen anderen beschriebenen Verfahren in Bezug auf erforderliche Meßzeit und erreichbare Genauigkeit überlegen.

Es wurde daher bei fast allen Messungen als Standardverfahren angewandt.

Während der Voruntersuchungen stand zunächst nur eine Hg 198-Lampe als Pumplichtquelle zur Verfügung. Deshalb wurde zur Messung von T_0 während der Voruntersuchungen das beschriebene Extrapolationsverfahren bei der Streulichtbeobachtung der Relaxation (B2.1.) angewandt.

C Vorbereitende Untersuchungen

C 1. Prinzipieller apparativer Aufbau

Die Apparatur, die in den Voruntersuchungen und mit einigen Abänderungen auch während der eigentlichen Experimente benutzt wurde, ist in der Abbildung 7 skizziert. Die Streuzelle (eine würfelförmige Quarzküvette von 3 cm Kantenlänge), gefüllt mit angereichertem Hg 202¹⁾ wurde nur während der ersten Voruntersuchungen benutzt. Die Isotopenzusammensetzung der Zellenfüllung ist in Tabelle 1 angegeben.

Tabelle 1:

Hg-Isotop	Massengehalt
196	0,1 %
198	1,77 %
199	3,05 %
200	4,34 %
201	4,49 %
202	84,81 %
204	1,64 %

Die Zelle befand sich im Zentrum eines Systems gekreuzter Helmholtz-Spulen.

Das äußere Spulensystem diente zur Erzeugung des magnetischen Gleichfeldes H_0 ($H_{0, \max} \approx 430$ Oe), das innere zur Erzeugung des magnetischen Wechselfeldes. Das Erdfeld konnte durch Zusatzwicklungen auf den Spulen kompensiert werden.

Pumplichtquelle war eine mit isotopenreinem Hg 198 (Anreicherungsgrad ca 90 %) gefüllte elektrodenlose Hochfrequenzlampe (20), (9), die sich zur Anregung in einem Hohlraumresonator befand (dieser wurde von einem Magnetron MG 8, Frequenz ca 2,4 GHz gespeist). Das Streulicht wurde senkrecht zur Ein-

1) Die Zelle wurde (21) ursprünglich zur Messung am radioaktiven Hg 203 mit angereichertem Hg 202 gefüllt, das zuvor mit Neutronen bestrahlt worden war. Im Verlauf der Messungen stellte sich heraus, daß die Isotopenzusammensetzung das optische Pumpen von Hg 201 bei Zimmertemperatur ohne die Kühlung eines Quecksilbertropfens in einem Seitenarm zur Dampfdruckeinstellung ermöglichte. Das Isotop Hg 202 bestimmt die Gesamtteilchendichte und wirkt für die restlichen Isotope als Puffergas (21). Wegen der Isotopie-Ver-

strahlung linearpolarisiert beobachtet. Vor dem Photomultiplier befand sich ein Interferenz-Filter für die Wellenlänge $\lambda = 2537 \text{ \AA}$. Bei dieser Geometrie ist das Streulichtsignal (Polarisationsebene parallel zu H_0) proportional zu $u_{2,0}^{(a)} \approx a_0(\omega)$ (vgl. Anhang 2).

$$S_{\text{Streul.}} \sim C(I_0, n) \cdot (1 - 1,65 u_{2,0}^{(a)})$$

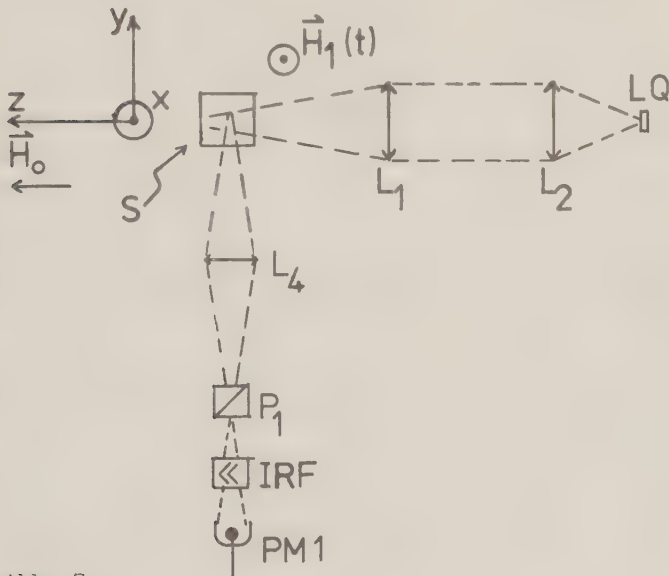


Abb. 7 :

Prinzipieller apparativer Aufbau: L_1, L_2, L_4 : Linsen; PM1 : Photomultiplier; IRF: Interferenz-Reflexions-Filter für $\lambda = 2500 \text{ \AA}$; P1: Glan-Luft-Prisma; S: Streugefäß

schiebung (9) kann das Isotop Hg 201 allein angeregt werden, wenn man z.B. eine Hg 198-Lampe zur Anregung verwendet. (Die Absorptionslinien von Hg 201 (3P_1 $F = 3/2$) und Hg 202 liegen um $\text{ca. } 300 \cdot 10^{-3}$ Kaiser auseinander, die Dopplerbreite der Absorptionslinien ist bei Zimmertemperatur $\text{ca. } 34 \text{ mK}$ (s. Abbildung 8)). Eine solche Zelle, an der ohne Kühlung oder Heizung optisch gepumpt werden kann, ist z.B. für Magnetometer-Konstruktionen sehr interessant.

6^3P_1

$$\Delta \bar{\nu} = \frac{E/hc}{\text{mK}}$$

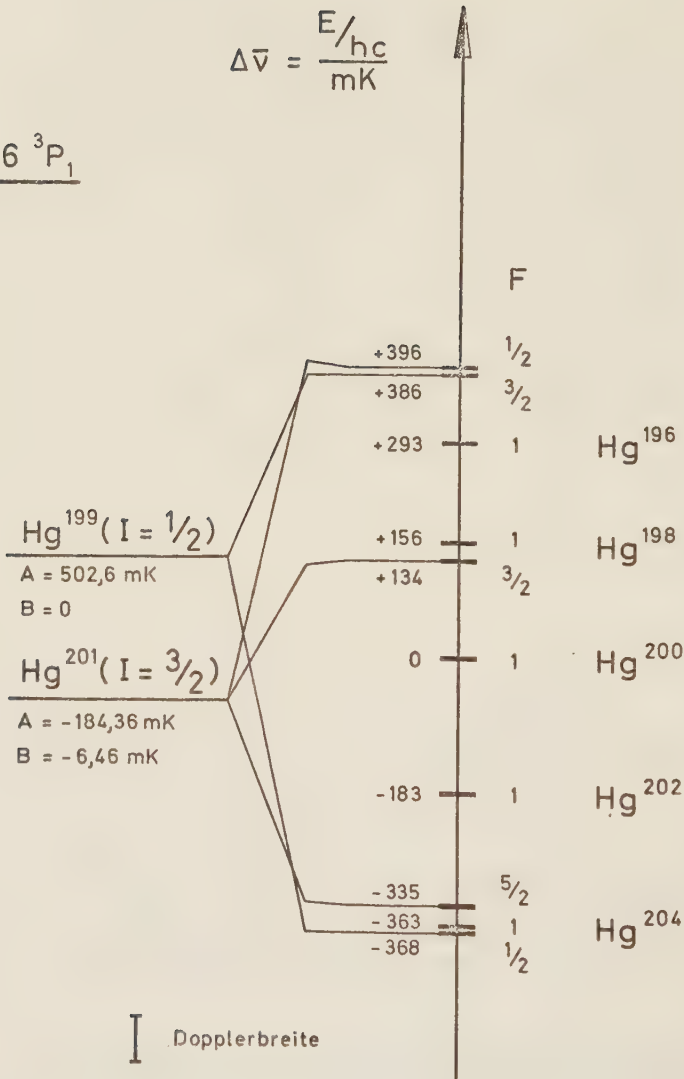


Abb. 8 :

Isotopieverschiebung beim Quecksilber im 6^3P_1 -Zustand
 Pumplicht: $\lambda = 2537 \text{ \AA}$ ($6^3P_1 \rightarrow 6^1S_0$)

C.2. Erste Messungen von Relaxationszeiten

Bei einer ersten orientierenden Meßreihe zur Untersuchung der Grundzustandsrelaxation von Hg 201 wurde bei Zimmertemperatur die Zeitkonstante τ_0 entsprechend dem unter B.2.1. beschriebenen Verfahren in Abhängigkeit vom statischen Magnetfeld untersucht (s. Abbildung 9). Dabei wurde noch kein Extrapolationsverfahren benutzt, sondern nur bei einer festen Pumplichtintensität gemessen. Das Ergebnis ist nicht eindeutig. Deutliche Änderungen der Relaxationszeit hätten sich bei der Auftragung der Relaxationsrate $1/\tau_0$ gegenüber dem Magnetfeld stark bemerkbar machen müssen, da die Pumprate $1/T_p$ nur von der Größenordnung 3 Hz bis 5 Hz war (die gemessenen Relaxationsraten waren von der Größenordnung 12 Hz). Während der Messungen heizte sich die Umgebung der Zelle bei hohen Magnetfeldern durch die Erwärmung der Spulen um einige Grad auf. Da eine starke Abhängigkeit der Relaxation von der Wandtemperatur des Streugefäßes bereits bei (22) nachgewiesen wurde, konnte das leichte Absinken der Relaxationsrate zu hohen Feldern hin nicht sicher als Magnetfeldabhängigkeit interpretiert werden. (Ein Einfluß des Anregungsprofils der benutzten Lampe, d.h. Änderung der Pumpzeitkonstanten durch "magnetic scanning" bei Variation des statischen Magnetfeldes konnte ebenfalls nicht ausgeschlossen werden.)

Umso überraschender war das Ergebnis einer zweiten Meßreihe, in der entsprechend B.1. das Verhältnis der Zeitkonstanten τ_0/τ_1 bestimmt wurde (Abbildung 10). Dies eindeutige Ergebnis konnte nur so interpretiert werden, daß die Zeitkonstante τ_1 sich im untersuchten Magnetfeldbereich mindestens um den Faktor 2 ändert.

Die Fehlerbalken in Abb.10 sind bei den Meßwerten im starken Magnetfeld so groß, da die Signale aus technischen Gründen nicht durch Frequenzvariation bei konstantem Feld gemessen werden konnten, sondern durch quasistatische Variation des Magnetfeldes bei konstanter Frequenz des Wechselfeldes. Dies führt zu einer Verzerrung der Signale, die Symmetrie um $\eta = \omega/\omega_0 = 1$ geht verloren.

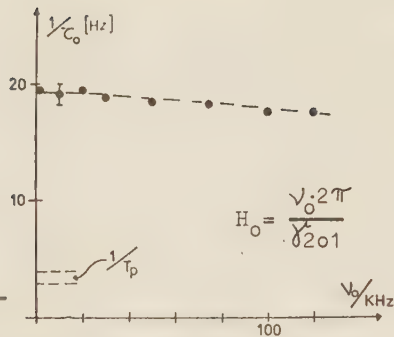


Abb. 9:

Magnetfeldabhängigkeit der Relaxationsrate $1/\tau_0$, gemessen aus der zeitlichen

Änderung des Streulichtpegels nach Ausschalten des magnetischen Wechselfeldes

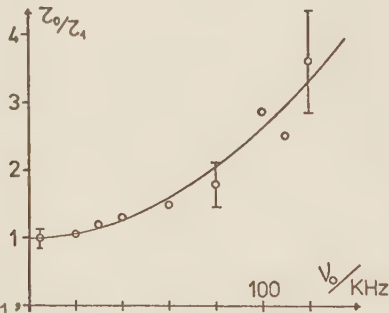


Abb. 10:

Magnetfeldabhängigkeit des Verhältnisses τ_0/τ_1 , bestimmt aus der

Signalform der magnetischen Resonanz (Einsattelung)

Die beobachtete deutliche Magnetfeldabhängigkeit des Verhältnisses τ_0/τ_1 (Abb. 10) legte die Verwendung direkter Verfahren zur Messung der einzelnen Zeitkonstanten nahe, die eine quantitative Aussage über die Magnetfeldabhängigkeit von τ_1 ermöglichen sollten.

Außerdem erschien es wünschenswert, die Apparatur so zu gestalten, daß eine gründliche und vor allem voneinander unabhängige Untersuchung der verschiedenen Relaxationseinflüsse (Wandtemperatur des Streugefäßes, Teilchendichte, Magnetfeld) möglich wurde.

Dazu waren zunächst einige Voraussetzungen zu schaffen.

C.3. Voruntersuchungen zur Wahl der endgültigen experimentellen und apparativen Bedingungen

C.3.1. Apparative Maßnahmen zur kontrollierten Einstellung von Wandtemperatur und Teilchendichte

Es sollte im Experiment möglich sein, die Wandtemperatur der Zelle und die Teilchendichte unabhängig voneinander einzustellen. Dazu mußte die Zelle in eine Ofenanordnung gesetzt werden. Gleichzeitig mußte ein Seitenarm der Zelle zur unabhängigen Einstellung des Dampfdruckes thermostatisierbar sein. Das vorhandene Streugefäß war dafür ungeeignet. Es wurde daher eine neue Zelle einfacherer Geometrie (s. Abb. 11) verwandt, deren grader Hals zur Thermostatisierung leicht in ein doppelwandiges Kühlgefäß gesteckt werden konnte. Die Abbildung 12 zeigt die im Experiment benutzte Ofenanordnung und Thermostatisiereinrichtung.

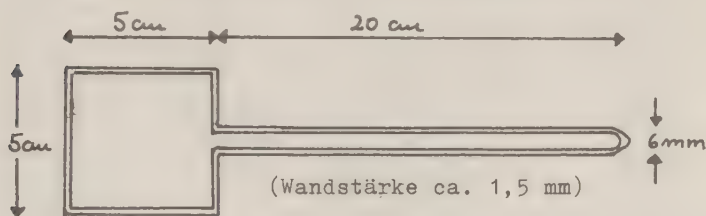


Abb. 11: Streugefäß (Material: homogenisiertes Quarzglas)

Der Ofen wurde durch ein Heißluftgebläse beheizt, das Temperaturen bis zu 600°C erzeugen kann, das Kühlgefäß zur Dampfdruckeinstellung wurde durch einen Umwälzthermostaten auf konstanter Temperatur gehalten. Das Heizgebläse wurde über einen Regeltransformator mit Wechselspannung betrieben. Da unter diesen Umständen Netzspannungsschwankungen zu starke Temperaturschwankungen (bis zu 15°C) hervorgerufen hätten, wurde eine elektronische Regelung mit Stellmotor benutzt, die bei Netzspannungsänderungen durch automatische Verstellung des Regeltransformators eine vorgewählte Spannung auf ca. 0,5 V bis 1 V konstant hielt.

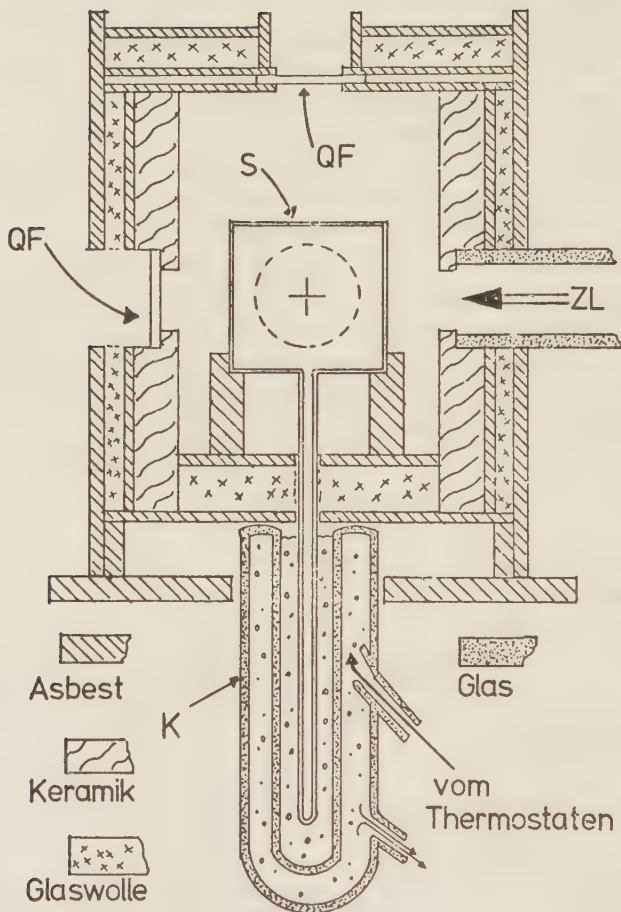


Abb. 12 :

Schnitt durch die Ofenanordnung (nicht maßstäblich):
S: Streugefäß; QF: Quarzfenster. Die Zuführung und Abführung der Heißluft geschah durch seitliche Öffnungen im Keramikrohr (ZL: Zuluft vom Heizgebläse). Ein Umwälzthermostat pumpte Wasser (bzw. Alkohol) konstanter Temperatur im Kreislauf durch den Mantel des doppelwandigen Kühlgefäßes (K). Zur Herstellung des Wärmekontaktes zwischen Zellenhals und Kühlgefäß war dieses mit Öl gefüllt.

Eine elektrische Beheizung des Ofens wäre prinzipiell leichter stabilisierbar. Wegen der damit jedoch verbundenen zusätzlichen Schwierigkeiten bezüglich magnetischer Streufelder, die einen erheblichen Einfluß auf die zu untersuchenden Relaxationseffekte haben können (vgl. Abschnitt E 1), wurde die Luftheizung vorgezogen.

C 3.2. Untersuchung der Betriebsbedingungen der Lichtquelle

Um Einflüsse der Lichtquelle (Linienprofil, Selbstabsorption) abschätzen zu können, wurde zur Untersuchung der Betriebsbedingungen der Lampen ein Fabry-Perot-Interferometer für die Wellenlänge $\lambda = 2537 \text{ \AA}$ aufgebaut. Untersuchungen damit zeigten, daß die bisher benutzte seitliche Lampenkühlung ungünstig war. Als optimal erwies sich die Kühlung mit Preßluft nur von der Rückseite der Lampe her.¹⁾

Die Konstruktion der für die Lampenanregung benutzten Hohlraumresonatoren wurde dementsprechend geändert. Abbildung 14 zeigt das Spektrum einer Hg 198 - Lampe bei guter Kühlung (a), sowie das Spektrum einer Lampe (Hg 198) bei nicht optimalen Kühlbedingungen (b). Abbildung 13 zeigt das Spektrum einer Hg 200 - Lampe unter optimalen Betriebsbedingungen (a) und bei ungünstiger Kühlung von seitlich-vorn (b). In Abbildung 15 sind magnetische Resonanzkurven dargestellt, die beim optischen Pumpen mit der gleichen (Hg 198-) Lampe unter günstigen (a) bzw. ungünstigen (b) Kühlbedingungen - bei sonst gleichen Verhältnissen - gemessen wurden: die Signalamplituden unterscheiden sich um den Faktor 2. Diese Messungen wurden noch mit dem alten Streugefäß durchgeführt.

- - - - -
1) Bei Kühlung der Lampe von der Seite bzw. von vorne muß das Licht vor dem Austrittsfenster eine relativ kalte Hg-Dampf-Zone passieren, die ein dementsprechend schmales Absorptionsprofil aufweist. (Starke Absorption im Zentrum der Spektrallinie führt zu Selbstumkehr). Bei Kühlung nur von hinten ist das Absorptionsprofil des Dampfes vor dem (warmen) Austrittsfenster breit und flach, es tritt keine nennenswerte Selbstumkehr auf.

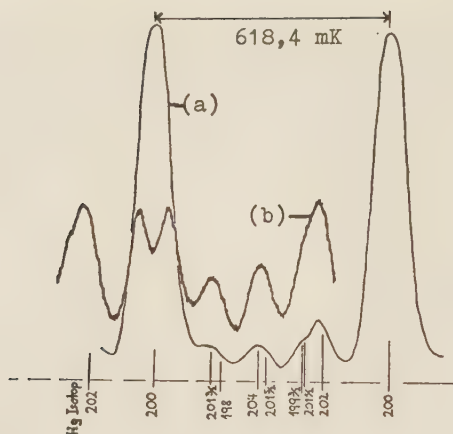


Abb. 13 :

Lampenspektren (Hg 200) bei optimaler (a) und bei sehr ungünstiger Kühlung (b)

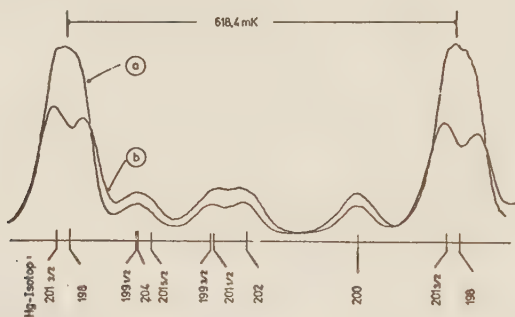


Abb. 14 :

Lampenspektren (Hg 198) bei guter (a) und bei ungünstiger Kühlung (b)

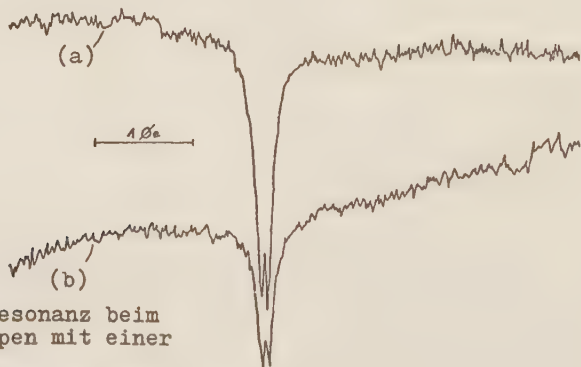


Abb. 15 :

Magnetische Resonanz beim optischen Pumpen mit einer Hg 198-Lampe
(a) gute Kühlung der Lampe
(b) ungünstige Kühlung

C.3.3. Füllung des neuen Streugefäßes

Bemerkenswert ist, daß die Brennbedingungen der Lampe am Streulichtpegel praktisch nicht zu unterscheiden waren. Das legte die Vermutung nahe, daß der wesentliche Teil des Streulichtes nicht vom Isotop Hg 201 stammte, sondern von den Restisotopen in der Lampe und Zelle hervorgerufen wurde, im wesentlichen wohl vom Hg 198-Anteil in der Zelle. Es wurde deshalb bei der Füllung der neuen Zelle sehr reines Hg 202 (Anreicherungsgrad 99 %) mit einer Beigabe von ca. 1 % Hg 201 (auf 87 % angereichert) verwandt.

Eine Massenanalyse der (auf 99 % angereicherten) Hg 202-Probe war wegen der geringen Ausbeute bei der Herstellung nicht durchgeführt worden.

Es wurde jedoch eine typische Massenanalyse angegeben, die bei einem früheren Trennprozeß (für die Herstellung von auf 99 % angereichertem Hg 202 am gleichen Massentrenner unter gleichen Bedingungen) erstellt worden war (s. Tabelle 2).

Tabelle 2: Isotopenzusammensetzung der Hg 202-Probe

<u>Hg-Isotop</u>	<u>Massengehalt</u>
196	< 0,1 %
198	0,5 % ?
199	0,1 %
200	0,2 %
201	0,2 %
202	99,0 %
204	< 0,1 %

Nach Angabe der Hersteller der Probe (Oakridge) war der Analysewert für Hg 198 mit 0,5% vermutlich zu groß ausgefallen, der tatsächliche Wert sollte bei ca. 0,3% liegen.

Die Isotopenzusammensetzung der Füllung des Streugefäßes ist also:

Hg 201: ca. 1,2 %

Hg 202: ca. 98 %

restliche Isotope ca. 0,8 %

Der Anteil jedes einzelnen der restlichen Isotope wäre dabei weniger als $1/4$ des Anteils von Hg 201, evtl. mit Ausnahme des Hg 198-Anteiles (vgl. Tabelle 2)

Wie sich zeigte, ist der Streulichtpegel bei der neuen Zelle unter gleichen Bedingungen nur etwa $1/5$ bis $1/4$ des Pegels bei der alten Zelle, die Signalamplitude dagegen ist etwa doppelt so groß¹⁾ (s. Abb. 16).

Der Anteil Hg 201 im Streugefäß wurde im Hinblick auf die Messungen zur Dichteabhängigkeit der Relaxation klein gehalten. So ist es möglich, etwa bis zu einer Gesamteilchendichte von $n = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ das Hg 201 im Streugefäß optisch zu pumpen. (Die Absorption von Hg 201 für das Pumplicht wird bei einer Teilchendichte von ca $n = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ so groß, daß das Licht nur stark geschwächt in die Zelle eindringen kann. Wegen des Anteils von 1 % Hg 201 in der Zelle wird der Wert $n_{\text{Hg 201}} = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ bei einer Gesamteilchendichte $n = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ erreicht).

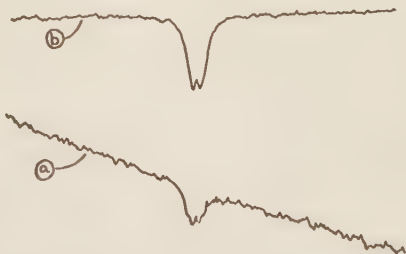


Abb. 16:

Magnetische Resonanz

a: alte Zelle

b: neue Zelle

1) Die neue Zelle ist größer (5 cm Kantenlänge) als die alte (3 cm Kantenl.). Es ist also möglich, daß die Vergrößerung der Signalamplitude zum Teil auf die Vergrößerung des Beobachtungsvolumens zurückzuführen ist.

C.4. Einstellung und Messung der experimentellen Einflußparameter

Die Auswertung von Messungen setzt eine - möglichst gute - Kenntnis der entscheidenden experimentellen Parameter (Dichte, Temperatur, Frequenz, Magnetfeldstärke) voraus.

C 4.1. Frequenz

Zur Frequenzmessung stand ein hochstabiler (TCXO-Quarz) Frequenzzähler zur Verfügung (relative Frequenzabweichung pro Woche $\Delta\nu/\nu \leq 10^{-7}$). Da außerdem bei den meisten Messungen als Frequenzgenerator ein ebenfalls quarzstabilisierter Synthesizer (SSN) mit einer Stabilität von $\Delta\nu/\nu \approx 10^{-5}$ verwandt wurde, war die Frequenzbestimmung im wesentlichen ein Eichproblem des Zählers bzw. des SSN.

C 4.2. Magnetfeldstärke

Messungen der Magnetfeldstärke im Bereich $H_0 \leq 10$ Oe konnten mit einer Förster-Sonde ausgeführt werden, mit deren Hilfe ein Eichfaktor für die Feldspulen bestimmt wurde. Damit war die Magnetfeldmessung prinzipiell auf eine Strommessung an einem Stromfühler-Widerstand zurückzuführen. Praktisch wurde dieses Verfahren jedoch nur zur Groborientierung benutzt, genaue Magnetfeldwerte wurden durch Beobachtung der Lage der magnetischen Resonanz beim optischen Pumpen bestimmt. Da das gyromagnetische Verhältnis $\gamma_{\text{Hg } 201} = \omega_0/H_0 = 2\pi\nu/H_0 = -1760,41$ (± 2) Hz/Oe (9) bekannt ist, kann damit das Magnetfeld durch eine Frequenzmessung bestimmt werden. Die erreichbare Genauigkeit liegt zwischen 10^{-5} und $5 \cdot 10^{-4}$.¹⁾ Die Magnetfeldkonstanz ist entsprechend der Konstanz des verwendeten stromstabilisierten Netzgerätes $\Delta H/H \leq 10^{-5}$ bei $H = 400$ Oe.

- - - - -
1) Die Genauigkeit hängt ab von der Linienbreite der magnetischen Resonanz, diese wiederum ist von den Relaxationszeiten abhängig. Dadurch wird für die absolute Meßgenauigkeit eine Grenze gesetzt (bei Zimmertemperatur ca. 5 mOe bis 10 mOe).

C.4.3. Wandtemperatur des Streugefäßes

Die Temperatur des Streugefäßes wurde zunächst mit einem Quecksilberthermometer bestimmt, das sich im Luftauslaß-Stutzen des Ofens befand (dies war offensichtlich die kälteste Stelle der Ofenanordnung). Später wurde ein Thermoelement in den Ofen eingebaut, das eine raschere und direktere Temperaturmessung ermöglichte. Als Anzeigeeinstrument diente ein Digitalvoltmeter, die gemessenen Spannungen mußten anhand einer Eichkurve in Temperaturwerte umgerechnet werden. Da die Zuluft der Gebläseheizung aus dem Raum angesaugt wurde, erwies es sich als notwendig, die Raumtemperatur zu stabilisieren, um eine Drift der Wandtemperatur durch Erwärmung des Raumes zu verhindern. Dies geschah durch Luftumwälzung mit einem (wesentlich größeren) Nebenraum, dessen Temperatur durch eine Klimaanlage geregelt wurde. So konnten die Schwankungen der Wandtemperatur kleiner als $\pm 2^{\circ}\text{C}$ gehalten werden. (Positiv wirkte sich dabei die hohe Wärmekapazität des Keramikofens aus, der bei hohen Temperaturen durch seine Wärmestrahlung einen weiteren Stabilisierungsfaktor darstellte.)

C.4.4. Teilchendichte im Streugefäß

Die Einstellung der Dichte in der Zelle geschah durch Thermostatisierung des Quecksilbers im Zellenhals. Durch das dazu verwandte Kühlgefäß wurde von einem proportional regelnden Umwälzthermostaten Flüssigkeit gepumpt, deren Temperatur auf einige zehntel Grad konstant gehalten werden konnte. Ein Thermometer im Thermostatenbad ermöglichte die Messung der Temperatur.

Entsprechend der Dampfdruckkurve (9), (24), (25) des Quecksilbers (s. Abb. 17) kann daraus die Sättigungsdampfdruckdichte bestimmt werden.

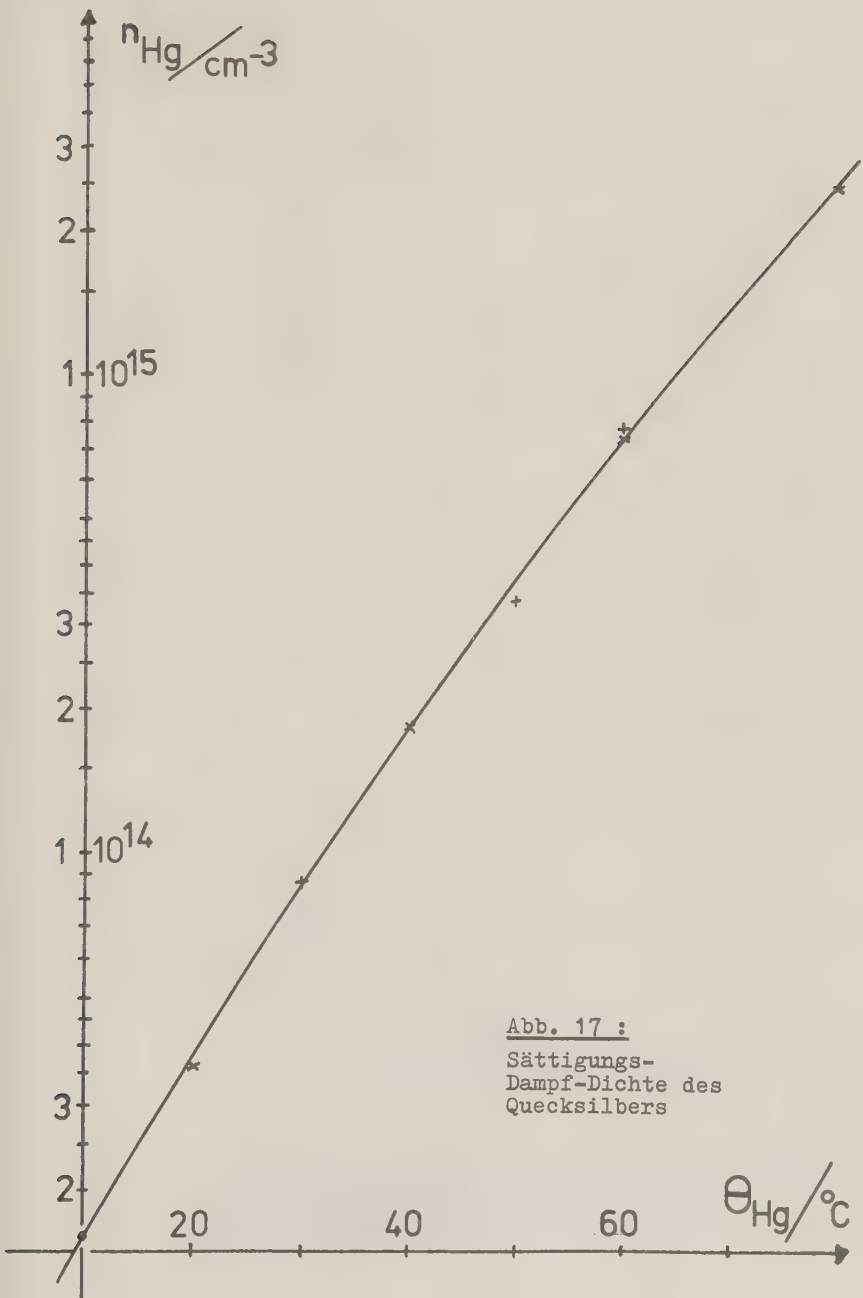


Abb. 17 :

Sättigungs-
Dampf-Dichte des
Quecksilbers

C.5. Dichte-Korrektur

C.5.1. Vorüberlegungen

Bei der Berechnung der Dichte aus der Temperatur des Zellenhalses ist zweierlei vorausgesetzt.

Erstens muß der Zellenhals die kälteste Stelle der Zelle sein, damit seine Temperatur den Dampfdruck bestimmt.

Zweitens darf die Temperatur der Gefäßwand nicht wesentlich über der Halstemperatur liegen. Mit steigen der Wandtemperatur steigt nämlich die Gastemperatur (kinetische Energie) des Quecksilberdampfes in der Zelle an, so daß eine Druckdifferenz ¹⁾ zwischen Zelle und Zellenhals entsteht. Es stellt sich dann durch Rückdiffusion von Atomen aus der Zelle in den Zellenhals ein Gleichgewicht ein. Dabei ist im Endzustand die Teilchendichte im Streugefäß kleiner als der aus der Temperatur des Quecksilbers im Zellenhals (Θ_{Hg}) berechnete Wert. Dementsprechend darf bei hohen Wandtemperaturen die Teilchendichte nicht einfach aus der Temperatur Θ_{Hg} berechnet werden.

Für ein einfaches Modell läßt sich ein Korrekturfaktor bestimmen.

Nehmen wir an, daß zwei Gefäße (1) und (2) durch eine dünne Wand mit einer Öffnung der Fläche F voneinander getrennt sind und daß sie sich auf verschiedenen Temperaturen Θ_1 und Θ_2 befinden. Gefüllt seien die Gefäße mit einem idealen Gas, die freie Weglänge sei groß gegenüber dem Durchmesser der Öffnung. Gleichgewicht ist dann erreicht, wenn pro Zeiteinheit gleich viele Teilchen in beiden Richtungen die Öffnung passieren ($dn_1 = dn_2$). Nun ist offensichtlich die pro Zeiteinheit auf die Fläche F auftreffende Teilchenzahl $N \sim n \cdot \bar{c} \cdot F$.

1) Von Druckausgleich sollte man erst sprechen, wenn die freie Weglänge (λ) vergleichbar mit dem Durchmesser der Eintrittsöffnung bzw. der Länge des Eintrittskanals wird, d.h. wenn beim Übergang vom Hals in die Zelle Stöße im Gas stattfinden.

n: Teilchendichte

$\bar{c}$: mittlere thermische Geschwindigkeit

Damit gilt im Gleichgewicht:

$$n_1 \cdot \bar{c}_1 \cdot F = n_2 \cdot \bar{c}_2 \cdot F$$

$$\text{d.h.: } \frac{n_1}{n_2} = \frac{\bar{c}_2}{\bar{c}_1} = \frac{\sqrt{\Theta_2}}{\sqrt{\Theta_1}}$$

$\Theta_1, \bar{c}_1$	$\Theta_2, \bar{c}_2$
n_1, p_1	n_2, p_2

Bei kleinen freien Weglängen λ kann kein Teilchen die Öffnung ohne Stoß passieren, im Extremfall geschieht im Gleichgewicht an der Öffnung kein Teilchenaustausch zwischen beiden Gefäßen. Der Gleichgewichtsfall ist dann durch Druckgleichheit charakterisiert:

$$p_1 = p_2 \quad \text{d.h.} \quad n_1 \cdot k \cdot \Theta_1 = n_2 \cdot k \cdot \Theta_2$$

(k: Boltzmann-Konstante)

$$\text{also: } \frac{n_1}{n_2} = \frac{\Theta_2}{\Theta_1}$$

Ist die Trennwand nicht dünn und der Einlaß wie im Experiment ein langer schmaler Kanal, wird die Lage unübersichtlich. Man muß dann die Diffusionsprozesse und Transportphänomene in engen Kanälen betrachten. Eine analytische Lösung der Diffusionsgleichung ist nur für ganz spezielle Bedingungen und Geometrien möglich; das Problem würde daher auf eine recht komplizierte numerische Untersuchung hinauslaufen. Stattdessen wurde versucht, auf experimentellem Wege Aufschluß über eine erforderliche Korrektur der Dichte bei hohen Wandtemperaturen zu erhalten.

C.5.2. Testexperimente zur Dichte-Korrektur

Als erster Schritt zur Festlegung der Dichte-Korrektur wurde bei verschiedenen Wandtemperaturen die Streulichtrate in Abhängigkeit von Θ_{Hg} gemessen. Mit steigender Temperatur des Quecksilber-Reservoirs nimmt die Streulichtintensität zunächst zu. Sie steigt jedoch nicht beliebig weiter. We-

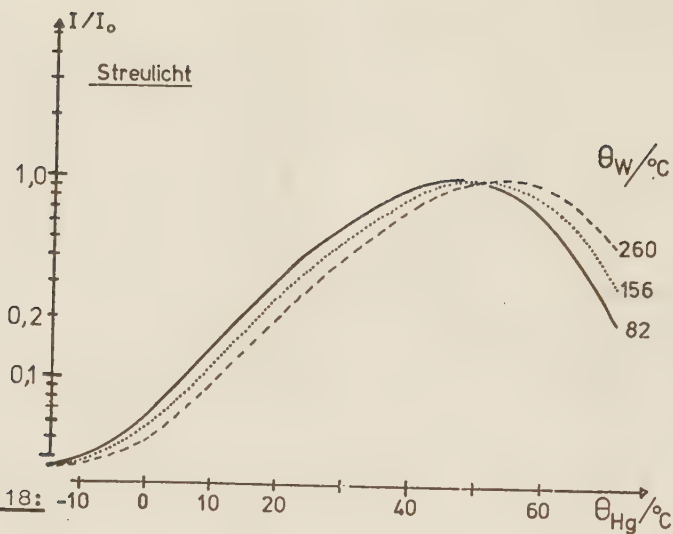


Abb. 18:

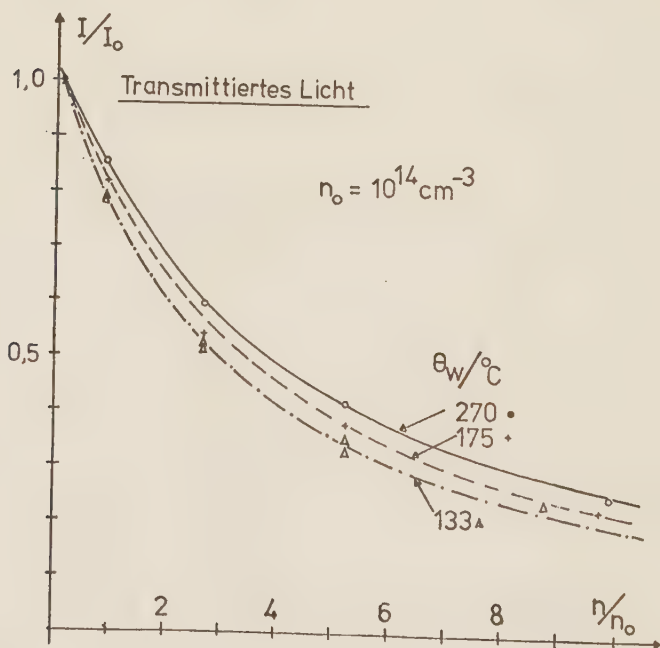


Abb. 19:

gen der einsetzenden Absorption erreicht sie ein Maximum und fällt mit dem Anwachsen der Absorption zu hohen Dichten hin wieder ab. Wenn man eine Änderung der Absorption durch Einfluß der Gastemperatur auf die Dopplerbreite in der Zelle vernachlässigt¹⁾, sollte die Lage des Maximums der Streulichtintensität nur von der Dichte, nicht aber von der Wandtemperatur abhängen²⁾.

Abbildung 18 zeigt das Ergebnis von Messungen bei drei verschiedenen Wandtemperaturen. In Tabelle 3 ist angegeben, bei welcher Reservoir-Temperatur Θ_{Hg} das Maximum der Streulichtintensität bei der jeweiligen Wandtemperatur liegt. Für die entsprechende Reservoir-Temperatur Θ_{Hg} (max) ist jeweils auch die daraus berechnete Dichte angegeben. In den letzten beiden Spalten wurden die Dichtewerte (entsprechend den angestellten Überlegungen s. C.5.1) mit dem Verhältnis $\Theta_{\text{Hg}} / \Theta_{\text{W}}$ bzw. mit der Wurzel daraus multipliziert.

Tabelle 3

$\Theta_{\text{W}} / ^\circ\text{C}$	$\Theta_{\text{Hg}} / ^\circ\text{C}$	$n_{\text{Hg}} / \text{cm}^{-3}$	$n_{\text{Hg}} \cdot \frac{\Theta_{\text{Hg}}}{\Theta_{\text{W}}} / \text{cm}^{-3}$	$n_{\text{Hg}} \cdot \sqrt{\frac{\Theta_{\text{Hg}}}{\Theta_{\text{W}}}}$
260	54	$4,99 \cdot 10^{-14}$	$3,06 \cdot 10^{-14}$	$3,91 \cdot 10^{-14}$
156	50	$3,80 \cdot 10^{-14}$	$2,86 \cdot 10^{-14}$	$3,30 \cdot 10^{-14}$
82	47	$3,08 \cdot 10^{-14}$	$2,78 \cdot 10^{-14}$	$2,93 \cdot 10^{-14}$

Die beste Übereinstimmung ergibt sich für die mit dem Verhältnis der Temperaturen korrigierten Dichten (max. Abweichung 10%).

Dieses Ergebnis konnte durch eine Absorptionsmessung bestätigt werden. Dabei wurde eine Hg 198 - Lampe benutzt (Anreicherung 87%), gemessen wurde die von der Streuzelle durchgelassene Intensität bei verschiedenen

1) Dies ist in erster Näherung möglich, da aufgrund des Anregungsmechanismus die Linienbreite der Lampe größer als 50 mK ist (das Absorptionsprofil der Atome in der Zelle erreicht eine Breite von ca. 50 mK bei 350 °C Wandtemperatur).

2) Dabei ist natürlich vorausgesetzt, daß die Wandtemperatur der Zelle noch deutlich größer ist als Θ_{Hg} .

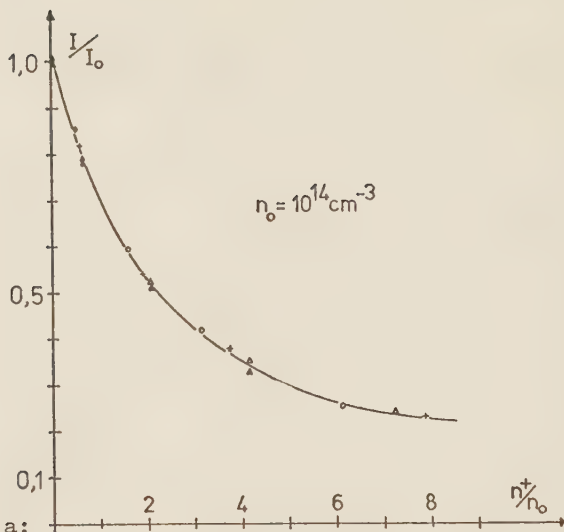


Abb. 20 a:

+) Dichte korrigiert mit dem Verhältnis von Reservoir- und Wand-Temperatur

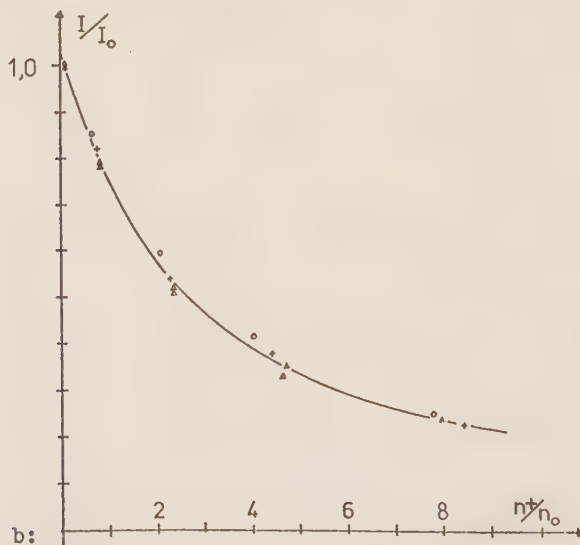


Abb. 20 b:

+) Dichte korrigiert mit der Wurzel aus dem Verhältnis von Reservoir-Temperatur und Wand-Temperatur

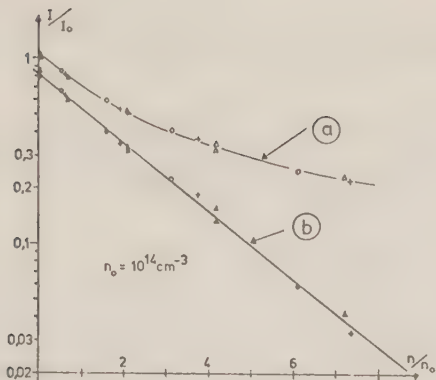


Abb. 21 :

Dichtekorrektur

wie in Abb. 20 a

(a): entspricht

Abb. 20 a; (b): angenommener Untergrund abgezogen

Wandtemperaturen in Abhängigkeit von der Reservoirtemperatur. Abbildung 19 zeigt das Ergebnis von Messungen für drei verschiedene Wandtemperaturen, aufgetragen gegenüber der aus der Reservoir-Temperatur berechneten Dichte. In Abbildung 20 sind die Dichten für jede Wandtemperatur mit dem Verhältnis Reservoir-Temperatur zu Wandtemperatur korrigiert (a), bzw. mit der Wurzel aus dem Verhältnis (b). Die Korrektur mit dem Verhältnis der Temperaturen ergibt wieder die beste Übereinstimmung, innerhalb der Meßgenauigkeit liegen dann im ganzen Bereich die Meßwerte auf einer gemeinsamen Kurve. Daß diese bei halblogarithmischer Auftragung keine Gerade ist (Abb. 21 (a)), liegt vermutlich an dem Anteil anderer Isotope in der Lampe (vergl. Abb. 14), deren Licht zunächst als konstanter Untergrund vorhanden ist. Die Absorption für diesen Untergrund wird erst bei sehr hohen Dichten merklich, da der Anteil der entsprechenden Isotope in der Zelle wesentlich kleiner ist, als der Anteil Hg 201 (vergl. Abschn. C.3.3.). Bei Abbildung 21 (b) wurde für den Untergrund der Wert $I/I_0 = 0,195$ angenommen und jeweils von den Meßwerten abgezogen.

Aufgrund der beschriebenen Beobachtungen wurde im Folgenden als Korrekturfaktor für die Dichte im Streugefäß stets das Verhältnis aus Reservoir-Temperatur und Wandtemperatur benutzt. Eine gewisse Unsicherheit bei der Kenntnis der Dichte bleibt allerdings bestehen.

D. Durchführung der Untersuchungen

D.1. Übersicht

In den folgenden Abschnitten wird über die durchgeführten Messungen zur Bestimmung der Relaxationszeitkonstanten berichtet.

D.1.1. Streulichtmessungen

Nur bei einer ersten Meßserie wurde das unter B2.1. beschriebene Extrapolationsverfahren zur Bestimmung der Zeitkonstanten T_0 benutzt. Dabei wurde die von (22) gemessene Wandtemperatur-Abhängigkeit der Relaxation nur qualitativ überprüft (s. Abb. 22). Nachdem der prinzipielle Nachweis einer Dichte-Abhängigkeit der Relaxation bei fester Wandtemperatur gelungen war (s. Abb. 23), wurde die Abhängigkeit der Zeitkonstanten T_0 vom statischen Magnetfeld bei hoher Wandtemperatur und hoher Dichte untersucht (s. dazu Abschnitt E.1.1). Als "Nebenprodukt" konnte aus den Extrapolationsmessungen die Pumpzeitkonstante T_p mit bestimmt werden, die der direkten Messung nicht zugänglich ist.

Wie die Streulichtmessungen zeigten, macht sich die Dichte-Abhängigkeit der Relaxation erst in einem Dichtebereich bemerkbar, wo man beim Taststrahlverfahren bereits ein passables Signal- zu Rausch-Verhältnis (S/R-Verhältnis) erzielt. Damit entfiel für die anstehenden Untersuchungen der wesentliche Vorteil des umständlicheren Extrapolationsverfahrens, nämlich die größere Empfindlichkeit bei niedrigen Teilchendichten.

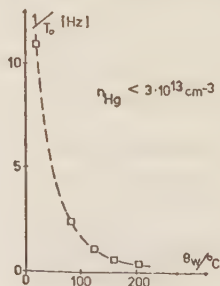


Abb. 22 : Wandtemperatur-
abhängigkeit der Relaxation
(qualitativer Nachweis)

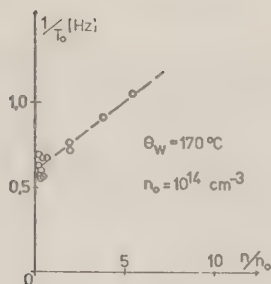


Abb. 23 :

Erster Nachweis einer
Dichteabhängigkeit der
Relaxation

D.1.2. Tastlichtmessungen

Bei den weiteren Messungen wurde ausschließlich das Taststrahlverfahren angewandt, das die direkte Beobachtung aller drei Zeitkonstanten T_0 , T_1 , und T_2 gestattet.

Untersucht wurde zunächst bei konstanter Wandtemperatur und Dichte der Einfluß des statischen Magnetfeldes auf die Relaxation (s. Abschnitt E.1.1). Dabei war vor allem das Verhalten der "transversalen" Zeitkonstanten T_1 und T_2 interessant, weil nach den Voruntersuchungen eine Magnetfeldabhängigkeit zumindest für T_1 zu erwarten war.

Da sich diese Erwartung bestätigte, wurden die weiteren Messungen, d.h. die Untersuchung der Wandtemperatur- und Dichte-Einflüsse, in schwachen Magnetfeldern ($H_0 \lesssim 9 \text{ Oe}$) durchgeführt, um den Magnetfeldeinfluß klein zu halten.

Die Abhängigkeit der Relaxation von der Teilchendichte wurde für Wandtemperaturen von 135°C bis 340°C (bei jeweils konstanter Wandtemperatur) untersucht (s. Abschnitt E.2.1).

Durch Extrapolation der für eine feste Wandtemperatur erhaltenen Meßwerte auf die Dichte $n_{\text{Hg}} = 0 \text{ cm}^{-3}$ konnte jeweils die Wandrelaxation bei der gegeb-

nen Temperatur bestimmt werden¹⁾ (s. Abschnitt E.2).

D.2. Die Meßanordnung

D.2.1. Aufbau bei Streulichtmessungen

Bei den Streulichtmessungen war der Aufbau praktisch der gleiche wie während der Voruntersuchungen (s. Abbildung 7). (Allerdings wurde das neue Streugefäß in der Ofenkonstruktion benutzt.)

Zur Einstellung der für das Extrapolationsverfahren (B.2.1) erforderlichen verschiedenen Pumplichtintensitäten wurden zwischen die Linsen L_1 und L_2 Abschwächer in den Pumplicht-Strahlengang eingefügt. Damit konnte die Intensität stufenweise bis auf etwa $1/3$ der Eingangsintensität abgeschwächt werden.

D.2.2. Aufbau bei Tastlichtmessungen

Der Aufbau bei den Tastlichtmessungen (Abbildung 24) war von der Geometrie her der gleiche wie bei den Streulichtmessungen (Abbildung 7). Es fehlte jedoch der Polarisator vor dem Photomultiplier. Zusätzlich in den Pumplicht-Strahlengang eingefügt war ein Compur-Photoverschluß (VS), dessen Funktionsablauf jedoch von dem eines üblichen Verschlusses abweicht (er ist im Ruhezustand geöffnet und schließt sich bei Betätigung für eine einstellbare "Dunkelzeit"). Gespannt und ausgelöst wurde der Verschluß über ein Zahnrad- und Nocken-System durch einen kleinen Servomotor, der in seiner Drehzahl regelbar war. Dadurch ließ sich die Wiederholfrequenz der Verschlußzyklen bestimmen. Ein eingebauter Blitzkontakt, der für die Dauer der Dunkelzeit geschlossen wird, konnte zur Erzeugung eines Trigger-Signals beim Öffnen oder Schließen des Verschlusses ausgenutzt werden.

Die entscheidende Änderung im Aufbau bestand in der

1) Hier ist zunächst der Magnetfeldeinfluß vernachlässigt. Er kann jedoch in erster Näherung ebenfalls durch Extrapolation bzw. Rückrechnen auf $H=0$ ϕ_e berücksichtigt werden, so daß man wirklich den Wändanteil der Relaxation allein erhält.

Verwendung einer zweiten (Hg 198) Lampe LQ₂, von der aus (senkrecht zum Pumplicht - Lampe LQ₁ -) ein schwacher Taststrahl durch die Zelle geschickt wurde. Durch die Lochblende (LB) wurde nur ein sehr schmaler Strahl ausgeblendet, der durch die Linse (L₃) etwa auf das Eintrittsfenster der Ofenanordnung fokussiert wurde. Zwischen LB und L₃ mußte das Tastlicht den Linear-Polarisator P₂ passieren. (Die Winkelstellung dieses Polarisators bestimmt, welche Anteile der Tensorkomponenten $\sigma_{2,x}^{(a)}$ im durchgelassenen Tastlicht beobachtet werden können (vgl. Anhang 2)). Ein zweiter Photomultiplier (PM₂ s. Abbildung 24b) ist in Abbildung 24a senkrecht zur Zeichenebene zu denken.

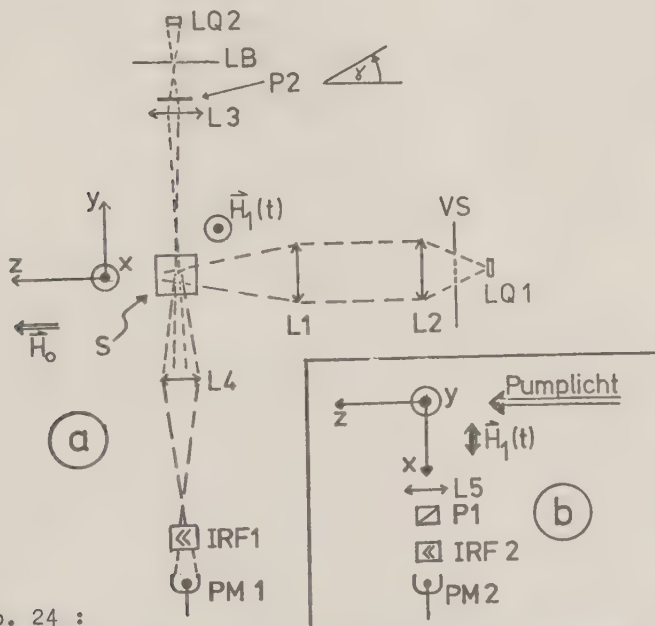


Abb. 24 :

Experimentelle Anordnung (die Spulen zur Erzeugung der Magnetfelder und die Ofenanordnung sind wegen der besseren Übersicht nicht mit eingezeichnet). S: Streugefäß; IRF: Interferenz-Reflektions-Filter für $\lambda = 2500 \text{ \AA}$; L: Linsen; P: Linear-Polarisatoren; LB: Lochblende; LQ: Lampen; PM: Photomultiplier; VS: Verschluß (Compur)

Er diene zur Kontrolle und gestattete weiterhin die Beobachtung der Streulichtsignale.

D.2.3. Steuer- und Meßelektronik

Ein Blockschaltbild der Elektronik ist in der Abbildung 25 dargestellt.

Funktionsbeschreibung: Zur Messung magnetischer Resonanzen kann wahlweise der Spulenstrom für das statische Magnetfeld oder die Frequenz des magnetischen Wechselfeldes synchron mit der Kanal-Fortschaltung des Mittelwertbildners (CAT 400) durchgesteuert werden.

Für die Messung der Relaxationszeit T_0 mit dem unter B2.1. beschriebenen Verfahren wird von der Steuerelektronik kurz nach dem Startimpuls für den Mittelwertbildner ein Steuersignal an die Pegelaustastung des Frequenzgenerators (SSN) gelegt. Solange dies Signal anliegt, bleibt die Ausgangsspannung des Generators auf "Null". Sobald die "CAT" einen Durchgang beendet hat, springt das Steuersignal wieder auf den Ausgangswert zurück und die Ausgangsamplitude des Frequenzgenerators steigt wieder auf den vorgewählten Wert an. Nach einer einstellbaren Pausenzeit beginnt mit dem nächsten Startimpuls ein neuer Zyklus, die Anzahl der Zyklen ist vorwählbar.

Der Ablauf bei Tastlichtmessungen der Relaxation ist ähnlich. Nur wird hier der Compur-Verschluß durch den Servomotor mit fester Wiederholfrequenz betätigt und liefert das Triggersignal zum Starten des Mittelwertbildners und zur Pegelaustastung des Wechselfeldes (Start und Austastung erfolgen in diesem Fall gleichzeitig). Das Triggersignal wird beim Schließen des Verschlusses erzeugt, damit werden gleichzeitig Pumplicht und Wechselfeld ausgeschaltet. Mit dem Öffnen des Verschlusses wird auch der Pegel des Frequenzgenerators wieder freigegeben. Ein neuer Startimpuls wird jedoch erst wieder beim nächsten Schließvorgang abgegeben.

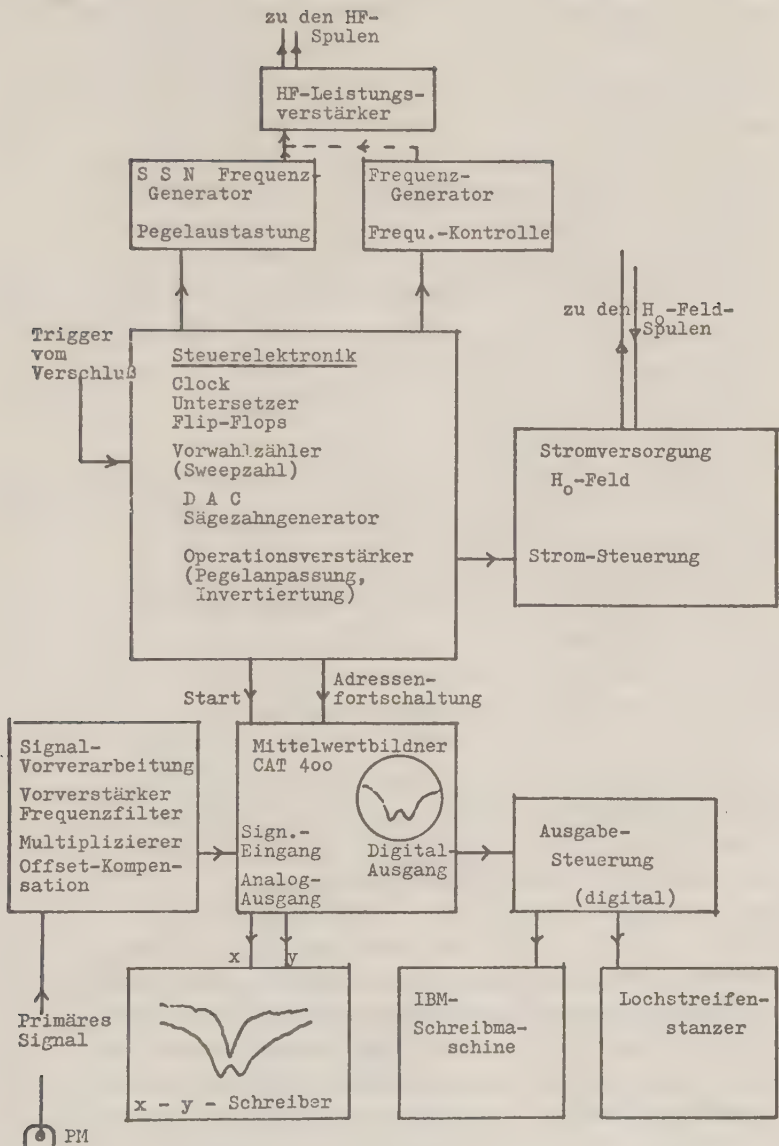


Abb. 25:

Blockschaltbild der Elektronik

Bei der Messung der Zeitkonstanten T_0 wird kein magnetisches Wechselfeld verwandt (beim Taststrahlverfahren).

Signalverarbeitung: Die Ausgangsspannung des Photomultipliers wird im Falle der T_0 -Messungen (wie auch bei den Streulichtmessungen) in einem Vorverstärker verstärkt, der konstante Untergrund kann durch Beimischen einer Offset-Spannung kompensiert werden. Das Ausgangssignal des Vorverstärkers geht dann direkt auf den Eingang des Mittelwertbildners.

Zur Messung der Zeitkonstanten T_1 und T_2 muß die Zeitkonstante beobachtet werden, mit der die Modulationen der Frequenz $\nu_0 = \omega_0/2\pi$ bzw.

$2\nu_0 = 2\omega_0/2\pi$ ausklingen.

Die Modulationssignale werden nach dem Vorverstärker auf ein (kondensator-gekoppeltes) abstimmbares elektronisches Filter (PAR 110 Tuned Amplifier/Oszillator) gegeben, das auf die Frequenz ν_0 bzw. $2\nu_0$ eingestellt wird. Je nach Einstellung der Resonanzschärfe des Filters wird nur ein mehr oder weniger schmaler Frequenzbereich um die eingestellte Frequenz herum verstärkt. Die Frequenzen ν_0 bzw. $2\nu_0$ können auf diese Weise selektiv gemessen werden, außerdem wird das S/R-Verhältnis für die jeweils eingestellte Frequenz erheblich verbessert, und ein konstanter Signalanteil wird automatisch abgetrennt.

Nach dem Filter und einer Verstärkung in einem rauscharmen Verstärker muß das Signal für die Weiterverarbeitung im Mittelwertbildner in ein Gleichspannungssignal umgewandelt werden. Dies geschieht durch Bildung des Quadrates der Signalfunktion mit Hilfe eines Analog-Multiplizierers. Für ein ver-
raushtes Signal $S = S_{\nu_0}(t) + R(t)$ gilt:

$$Q(S) = S^2 = S_{\nu_0}^2(t) + 2 R(t) S_{\nu_0}(t) + R^2(t)$$

$R(t)$: statistisches Rauschen

Das quadrierte Signal wird mit einer Zeitkonstanten integriert, die groß gegenüber der Periodendauer, aber klein gegenüber der Relaxationszeit ist. Bei Integration gilt:

$$\begin{aligned}\langle Q(S) \rangle &= \lim_{\tau \rightarrow \infty} \frac{1}{\tau} \int_0^{\tau} S^2 dt \\ &= \langle S_{\nu_0}^2(t) \rangle + \langle R^2(t) \rangle + \langle 2 R(t) \cdot S_{\nu_0}(t) \rangle\end{aligned}$$

Für zentriertes Rauschen gilt (falls $S(t)$ und $R(t)$ nicht korreliert sind):

$$\langle 2 \cdot R(t) \cdot S(t) \rangle = \langle 2 \cdot R(t) \rangle \langle S(t) \rangle = 0$$

$$\begin{aligned}\text{Daher ist: } \langle Q(S) \rangle &= \langle S_{\nu_0}^2 \rangle + \langle R^2 \rangle \\ &= \langle S_{\nu_0}^2 \rangle + \text{const.}\end{aligned}$$

Bei einer Polarisatorstellung $\gamma = 90^\circ$ (vergl. Anhang 2) ist der abklingende modulierte Signalanteil:

$$S_{\nu_0} \sim \text{Realteil} \left(\mathcal{G}_{2,2}^{(a)}(0) \exp(-2i\omega_0 t) \right) \cdot \exp(-t/T_2)$$

also:

$$\langle Q(S) \rangle = \text{const.}' \cdot \exp(-2t/T_2) + \text{const.}$$

Die Zeitkonstante, mit der das quadrierte Signal - die eigentliche Meßgröße - abklingt, ist gerade die Hälfte der echten Zeitkonstanten. Das muß bei der Auswertung berücksichtigt werden.

D. 3. Auswertung der Messungen

Die Meßwerte (Kanalinhalte des Mittelwertbildners) wurden auf Lochstreifen ausgegeben und zur Auswertung über einen Lochstreifenleser in den Speicher einer Rechenanlage eingelesen.

Die Auswertung geschah mit Hilfe eines Rechenprogrammes, das es ermöglicht, in einem Iterationsverfahren eine Exponentialfunktion als Ausgleichskurve an die Meßwerte anzupassen.

Die Anpassung geschieht in dem Programm nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate. Berechnet werden Näherungslösungen für die drei Parameter: Amplitude, Untergrund und Zeitkonstante (bzw. deren Kehrwert). Die Rechnung wird abgebrochen, wenn die Änderung der "gefitteten" Parameter von einem Iterationsschritt zum nächsten kleiner als 10^{-9} wird.

Zur weiteren Auswertung wurde angenommen, daß die verschiedenen an der Relaxation beteiligten Prozesse unabhängig voneinander sind. Dann läßt sich die Zeitfunktion als Produkt mehrerer Exponentialfunktionen mit verschiedenen Zeitkonstanten schreiben, eine gemeinsame "integrale" Zeitkonstante berechnet sich aus der Summe der Kehrwerte der einzelnen Zeitkonstanten (Summe der Relaxationsraten).

$$1/\tau = \sum_i 1/T_i$$

Da also die Relaxationsraten der verschiedenen Prozesse (sofern diese unabhängig voneinander sind) additiv sind, empfiehlt sich - wenn mehr als ein Anteil an der Relaxation zu erwarten ist - die Abhängigkeit der Relaxationsraten und nicht -Zeitkonstanten gegenüber der jeweils im Experiment variierten Größe aufzutragen. Die Verhältnisse werden dadurch übersichtlicher. (Das Extrapolationsverfahren B2.1. wird z.B. durch diese Art der Auftragung erleichtert, man muß dann nur eine Geraden-Extrapolation durchführen.)

Für die Auswertung der Messungen wurden im allgemeinen Fall folgende Anteile an der Relaxation angenommen:

$$1/\tau_i = 1/T_{\text{Wand}}^i + 1/T_{\text{Gas}}^i + 1/T_{\text{Magnetfeld}}^i + 1/T_{\text{Pumlicht}} + 1/T_{\text{Tastlicht}}$$

Dabei kann fast immer der Tastlichtanteil gegenüber allen anderen vernachlässigt werden ($T_{\text{Tastl.}}$ war immer größer als 20 sek, im allgemeinen ca 50 sek.)

Für den Wandanteil gilt nach (26):

$$1/T_{\text{Wand}}^0 = 1/T_{\text{Wand}}^1 = 1/T_{\text{Wand}}^2 = : 1/T_{\text{Wand}}$$

E. Ergebnisse der Messungen

E.1. Magnetfeldabhängigkeit

E.1.1. Meßergebnisse

Die Abbildung 26 zeigt die Relaxationsraten $1/T_0$, $1/T_1$, $1/T_2$ für zwei verschiedene Wandtemperaturen (160°C und 290°C) bei gleicher Temperatur des Quecksilberreservoirs - also etwa der gleichen Dichte - gemessen. Die Raten sind gegenüber dem statischen Magnetfeld aufgetragen, wobei nicht die Magnetfeldstärke selbst, sondern die jeweilige Resonanzfrequenz für die magnetische Resonanz im Grundzustand angegeben ist ($H_0 \approx \nu_0 \cdot 280 \text{ Hz}$).

Die Relaxationsrate $1/T_0$ ist in guter Näherung unabhängig vom Magnetfeld. Das bestätigen auch die in Abbildung 27 dargestellten Meßwerte bei 209°C Wandtemperatur und einer höheren Dichte ($n_{\text{Hg}} \text{ ca. } 4 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$) die mit dem Extrapolationsverfahren (B 2.1.) gewonnen wurden. Dagegen zeigen die Raten $1/T_1$ und $1/T_2$ eine starke Magnetfeldabhängigkeit.

Die Meßwerte lassen sich gut durch Parabeln annähern, wobei (für feste Wandtemperatur) bei gleichem Magnetfeld offensichtlich gilt:

$$(1/T_2 - 1/T_2 \text{ Wand}) / (1/T_1 - 1/T_1 \text{ Wand}) \approx 4$$

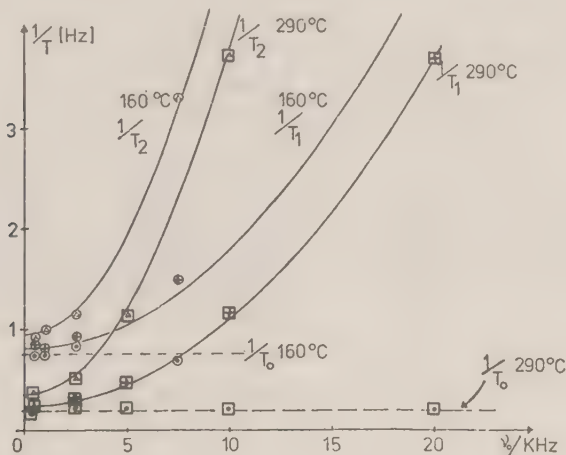


Abb. 26 :

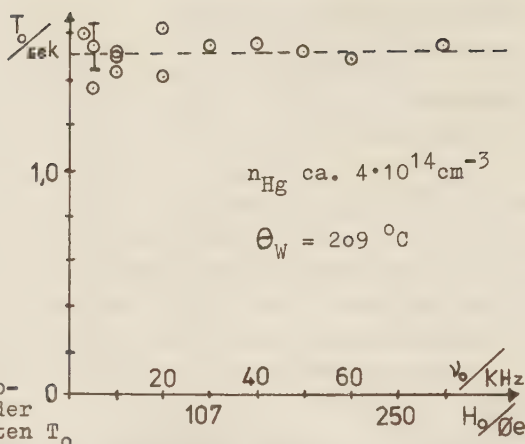


Abb. 27:

Magnetfeldabhängigkeit der Zeitkonstanten T_0

E.1.2. Deutung der "Magnetfeldabhängigkeit" durch Einflüsse der Inhomogenität des statischen Magnetfeldes

Wenn man das Auftreten der mit der einfachen (ω_0) oder doppelten ($2\omega_0$) Larmorfrequenz modulierten Signalanteile als Effekt der kollektiven Präzession der ausgerichteten Atomkerne um die Richtung des statischen Magnetfeldes H_0 deutet (wobei $\omega_0 = \gamma_{201} \cdot H_0$ ist), liegt es nahe, die Inhomogenität des magnetischen Feldes für den beobachteten Effekt verantwortlich zu machen. Im inhomogenen Magnetfeld gibt es keine einheitliche Larmorfrequenz, was für die einzelnen Atomkerne nach einer gewissen Zeit zu einem Verlust der anfänglich vorhandenen Phasenbeziehung bei der Präzession führt und somit einen zusätzlichen Anteil zu den "transversalen" Relaxationsraten darstellt.

Diese Überlegungen sind unter gewissen vereinfachenden Annahmen im Anhang (Anhang 1) weitergeführt und liefern tatsächlich für die gegebenen experimentellen Bedingungen eine quadratische Abhängigkeit der zusätzlichen Relaxationsrate von der mittleren

Feldinhomogenität. Da bei Vernachlässigung der Inhomogenität durch Umgebungseinflüsse (Eisenteile usw.) die relative Inhomogenität bei fester Spulen-Geometrie der H_0 -Feld-Spulen konstant ist, wächst die absolute Inhomogenität also proportional zum statischen Feld H_0 , der zusätzliche "Feldanteil" der Relaxationsrate also proportional zu H_0^2 .

Die in Anhang 1 angestellten Überlegungen liefern auch den Faktor 4 als Verhältnis der Feldanteile zu den Relaxationsraten $1/T_2$ bzw. $1/T_1$:

$$1/T_2 \text{ Feldinhom.} : 1/T_1 \text{ Feldinhom.} = 4$$

Die Tatsache, daß die drei Relaxationsraten $1/T_i$ ($i = 0, 1, 2$) für verschwindendes Magnetfeld H_0 offensichtlich nicht zusammenfallen, soll keineswegs als grundsätzliche Verschiedenheit der jeweiligen nicht magnetfeldbedingten Anteile gedeutet werden. Zweifellos ist auch ohne statisches Magnetfeld eine Restinhomogenität - hervorgerufen durch Eisenteile in der Umgebung usw. - vorhanden, die eine Aufspaltung der Relaxationsraten für $H_0 = 0$ erklärt.

E.1.3. Testexperimente zum Einfluß der Magnetfeldinhomogenität

Um die beschriebenen Vorstellungen über die Ursache der Magnetfeldeinflüsse experimentell zu stützen, wurden einige Testexperimente durchgeführt.

1) Zunächst wurde in einem sehr groben Test die Homogenität des Feldes einfach dadurch gestört, daß ein Miniaturmagnet in ca. 15 bis 20 cm Abstand von dem Streugefäß befestigt wurde.

Dadurch wurde allerdings nicht nur eine Inhomogenität hervorgerufen, sondern auch die Feldstärke des Magnetfeldes etwas verändert, so daß die Frequenz des Wechselfeldes zur Erfüllung der Resonanzbedingung nachgestimmt werden mußte.

Abbildung 28 zeigt eine Messung der Zeitkonstanten T_1 mit und ohne Störung des Feldes durch den Miniaturmagneten. Das Ergebnis bedarf keines Kommentars.

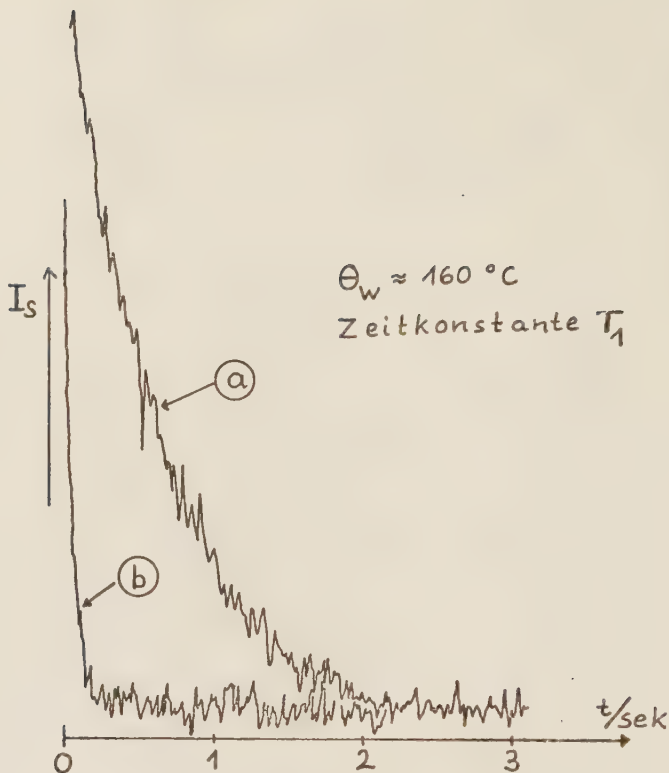


Abb. 27 :

Testmessung zum Einfluß der Magnetfeldinhomogenität
Die Auswertung ergab:

(a) $T_1 \approx 760$ msek, (b) $T_1 \approx 100$ msek

Bei der Messung (b) befand sich ein Miniaturmagnet
in ca. 15 bis 20 cm Abstand vom Streugefäß.

2) Zur kontrollierten Beeinflussung der Feldinhomogenität wurde in einem weiteren Test eine Unvollkommenheit der H_0 -Feld-Spulen ausgenutzt.

Nach dem Aufbau des Spulensystems hatte sich bei einer Vermessung des Magnetfeldes mit einer Hall-Sonde herausgestellt, daß bei gleichem Strom durch beide Spulen - trotz Helmholtz-Anordnung - im Zentrum des Spulensystems eine deutliche Inhomogenität längs der Spulenachse vorhanden war (Abbildung 29). Offensichtlich war der Herstellerfirma beim Bewickeln der Spulen ein Fehler unterlaufen, es befanden sich auf einer Spule ca. 14 Windungen weniger als auf der anderen. Durch Aufbringen von 14 Zusatzwindungen konnte die Homogenität des Feldes erheblich verbessert werden (s. Abbildung 30). Diese nachträglich aufgebrachten Windungen waren normalerweise mit den beiden Spulen elektrisch in Reihe geschaltet.

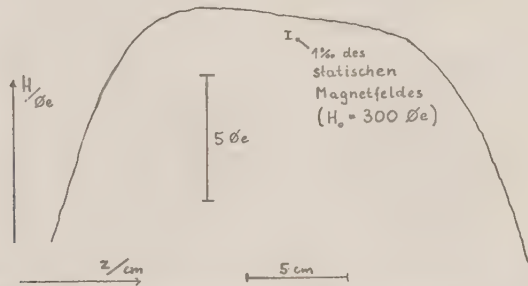


Abb. 29 :

Feldvermessung:

Spulen ohne Zusatzwicklung (Hall-Sonden Differenzmessung im empfindlichsten Bereich, Grund-Signalpegel elektronisch kompensiert, Genauigkeit bezogen auf H_0 ca. 10^{-4}), vermessen wurde das Feld in Richtung der Spulenachse.

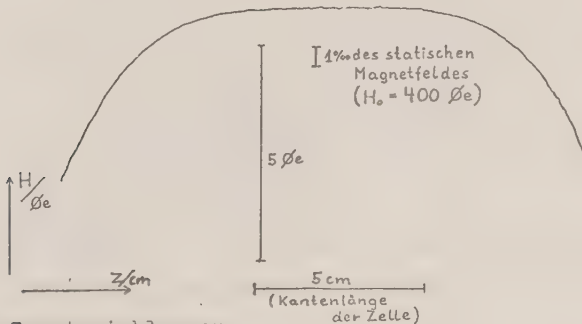
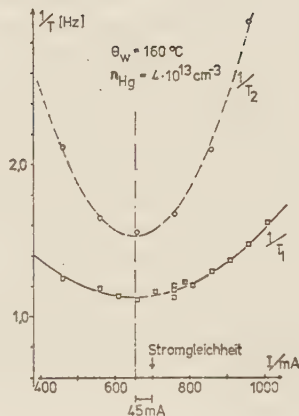


Abb. 30 :

Spulen mit Zusatzwicklungen

Abb. 31 :

Messung der transversalen Zeitkonstanten in Abhängigkeit von einer linearen Inhomogenität in Richtung der Spulenachse
Die eingezeichneten Kurven sind entsprechend Anh. 1 angepaßte Parabeln, wobei nur die Meßwerte für T_2 zur Anpassung benutzt wurden. Die angepaßte Kurve für T_1 ergibt sich aus dem 1 : 4 Verhältnis (Anh. 1) der Inhomogenitätsanteile der beiden Relaxationsraten.



Für den Test wurden die Zusatzwicklungen getrennt von den Feldspulen durch ein separates Netzgerät gespeist. Die Abbildung 31 zeigt Messungen der Relaxationsraten $1/T_1$ und $1/T_2$ bei festem Spulenstrom durch die Helmholtz-Spulen und verschiedenen Werten für den Strom durch die Zusatzwicklung.

Beim Minimum der gemessenen Relaxationsraten stimmen die beiden Stromwerte etwa überein - eine nachträgliche Bestätigung dafür, daß annähernd die richtige Zahl von Zusatzwindungen gewählt wurde (vielleicht sogar eine zuviel).

Der Einfluß der in diesem Fall hauptsächlich longitudinalen Inhomogenität ist damit eindeutig nachgewiesen (natürlich wurde nach jeder Stromverstellung die Frequenz des Wechselfeldes zur genauen Erfüllung der Resonanzbedingung nachgestimmt.).

Da die Inhomogenität in guter Näherung proportional zum Strom durch die Zusatzwicklung ist, die gemessenen Relaxationsraten aber - über dem Strom aufgetragen - wieder gut durch Parabeln angenähert werden können, ist damit zum einen ein weiterer Nachweis für die quadratische Abhängigkeit der Relaxationsraten von der Inhomogenität des Magnetfeldes erbracht. Zum andern ist damit aber eindeutig gezeigt, daß die Relaxationsraten nicht vom Abso-

lutwert des Magnetfeldes abhängen (der in diesem Fall nahezu konstant war), sondern tatsächlich - wie angenommen - von der Inhomogenität!

E.1.4. Vergleich zwischen den Meßergebnissen und dem im Anhang abgeschätzten Einfluß der Inhomogenität

Wenn man die im Anhang 1 hergeleitete Gleichung für den Feldanteil der Relaxation (Inhomogenitätsanteil) zu einem Fit für die in Abbildung 26 dargestellten Meßpunkte verwendet, so erhält man die eingezeichneten Linien. Dabei wurde für die angepaßten Kurven angenommen:

$$1/T_i = 1/T_i^0 + 1/T_i^{\text{inhom.}} = 1/T_0 + 1/T_i^{\text{inhom.}}$$

Für die Feldinhomogenität erhält man aus dem Fit:

$$\langle (dH_1)^2 \rangle \approx 1,08 \cdot 10^{-6} H_0^2 + 4,72 \cdot 10^{-5} \phi e^2 \text{ (Restinhom.)}$$

Die in den Voruntersuchungen beobachtete Magnetfeldabhängigkeit des Verhältnisses τ_0/τ_1 läßt sich mit dem gleichen Ansatz erklären, wenn man zusätzlich berücksichtigt, daß für die Magnetfeldinhomogenität wegen der kleineren Streuzelle bei den Voruntersuchungen ein Korrekturfaktor anzubringen ist.

Die beste Übereinstimmung der Meßwerte mit der dementsprechend angepaßten Kurve (Abbildung 10) ergibt sich für einen Korrekturfaktor $\alpha \approx 0,55$, was etwa dem Verhältnis der Zellenabmessungen entspricht. (Das Verhältnis der Kantenlängen d der alten (a) bzw. neuen (n) Zelle war: $d_a/d_n = 0,57$.)

Bei den Voruntersuchungen wurde für τ_0 bei einer Wandtemperatur von ca. 23°C ein mittlerer Wert von 77,3 msek gemessen. Bei Vernachlässigung des Volumenanteiles der Relaxation, der bei einer Wandtemperatur von 23°C keine Rolle spielt, gilt:

$$1/\tau_1 = 1/T_{\text{Wand}} + 1/T_p + 1/T_1^{\text{inhom.}}$$

$$1/\tau_0 = 1/T_{\text{Wand}} + 1/T_p$$

daraus folgt:

$$(E\ 1) \quad \tau_0 = \frac{\frac{\tau_0}{\tau_1} - 1}{\frac{1}{T_1} \text{inhom}}$$

Der Korrekturfaktor α für die Magnetfeldinhomogenität in der kleineren Zelle bestimmt sich aus der Forderung, daß das entsprechend Gleichung E 1 aus den Meßwerten (Abbildung 10) und dem berechneten Inhomogenitätsanteil sich ergebende τ mit dem gemessenen Wert $\bar{\tau}_0 = 77,3$ msek übereinstimmen soll.

E.2. Abhängigkeit der Relaxation von der Wandtemperatur des Streugefäßes

E.2.1. Meßergebnisse

Die Abbildung 32 zeigt die Abhängigkeit der longitudinalen Relaxationsrate $1/T_0$ von der Wandtemperatur des Streugefäßes. Wie sich bei halblogarithmischer Darstellung bestätigt (Abbildung 33), kann der Verlauf gut durch eine Exponentialfunktion wiedergegeben werden:

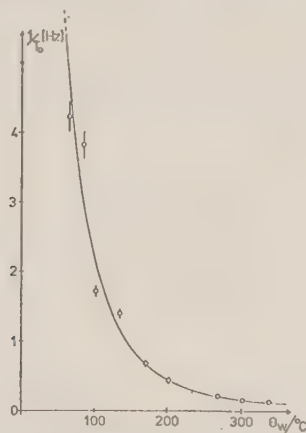
$$\frac{1}{T_0} = f(\Theta_W) = A \cdot \exp(\text{const}/\Theta_W)$$

(Θ_W : Wandtemperatur in °K)

Abb. 32 :

Wandtemperaturabhängigkeit der Relaxationsrate

$1/T_0$: angepaßte Exponentialfunktion (Fehlerquadrat-Minimum) eingezeichnet.



In Abbildung 34 sind entsprechende Meßwerte für die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsraten $1/T_1$ und $1/T_2$ aufgetragen. Dabei ist der magnetfeldabhängige Anteil der Relaxationsraten, entsprechend den Überlegungen im Anhang (Anhang 1) und den in Abschnitt E 1 dargestellten Meßergebnissen, bereits abgezogen. Die Werte für alle drei Relaxationsraten sind jeweils den Messungen zur Dichteabhängigkeit (Abschnitt E 3) entnommen und zwar ergeben sie sich aus der Extrapolation der für feste Wandtemperatur und konstantes Magnetfeld (bei verschiedenen Dichten) gemessenen Relaxationsraten auf die Dichte $n_{Hg} = 0 \text{ cm}^{-3}$. Somit

ist in den Abbildungen 32-34 nur der Wandanteil der Relaxation dargestellt.

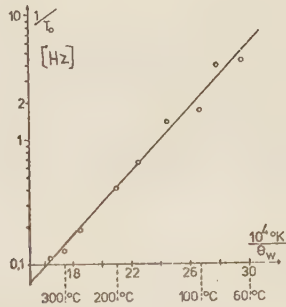
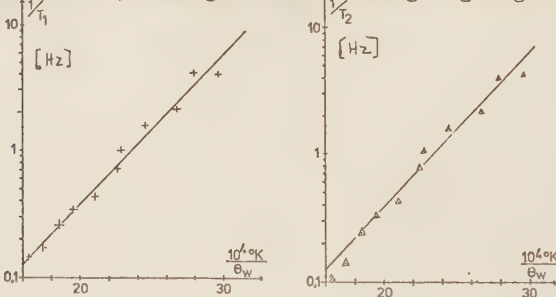


Abb. 33 :

Wandtemperaturabhängigkeit der Relaxationsrate $1/T_0$ mit logar. Ausgleichsgeraden

Abb. 34 :

Wandtemperaturabhängigkeit der transversalen Relaxationsraten (Inhomogenitäts-Beitrag abgezogen)



E.2.2. Deutung der Ergebnisse durch die Temperaturabhängigkeit der Adsorptionszeit auf der Wand

Eine starke Abhängigkeit der Relaxation von der Wandtemperatur des Streugefäßes ist bereits seit längerer Zeit bekannt (22). Beim Hg 201 wird die Wandrelaxation auf die Wechselwirkung des Kern-Quadrupolmomentes mit dem Gradienten des elektrischen Feldes auf der Wand (dieser wird durch eine Deformation der Elektronenhüllen der auf der Wand adsorbierten Atome erzeugt), zurückgeführt (26), (22). Da nach dieser Theorie die

Wechselwirkung nur während des Aufenthalts der Atome auf der Wand stattfindet, ist für die absolute Größe der Relaxationszeit T_0 die "effektive" Wechselwirkungszeit entscheidend, die durch das Verhältnis der Verweilzeit auf der Wand (t_s) zur Summe aus Verweilzeit und freier Flugzeit (t_v) zwischen zwei Wandstößen bestimmt wird. Nach (22) gilt:

$$\frac{1}{T_0} = \frac{t_s}{t_s + t_v} \tau_c \langle \mathcal{H}^2 \rangle \text{ (vgl. dazu (26) Formel 12)}$$

τ_c : Korrelationszeit der Wechselwirkung
 $\langle \mathcal{H}^2 \rangle$ zum Erwartungswert für das Quadrat des Hamiltonoperators der Wechselwirkung proportionale Größe ¹⁾

Da $t_s \ll t_v$ ist (9), (22), (26), kann im Nenner t_s gegenüber t_v vernachlässigt werden, es gilt also:

$$\frac{1}{T_0} \sim \frac{t_s}{t_v}$$

Durch Änderung der Wandtemperatur wird die Verweilzeit t_s geändert. Die Flugzeit t_v wird auch etwas beeinflusst, da sich mit der Wandtemperatur die Gas-temperatur und somit die thermische Geschwindigkeit der Atome ändert.

$$t_v \sim \frac{d}{c} \sim \frac{1}{\sqrt{\theta_w}}$$

Für die Verweilzeit auf der Wand kann man ansetzen (30):

$$t_s = t_0 \exp(E_B/k\theta_w) \quad k: \text{ Boltzmann-Konstante}$$

E_B : Bindungsenergie auf der Wand

Daraus folgt:

$$(E 2) \quad \frac{1}{T_0} \sim \frac{t_0 \exp(E_B/k\theta_w)}{t_v} \sim \exp(E_B/k\theta_w) \cdot \sqrt{\theta_w}$$

Bei (22) wird die schwache Abhängigkeit der Flugzeit von der Temperatur vernachlässigt:

$$(E 3) \quad \frac{1}{T_0} = A \exp(E_B/k\theta_w)$$

1) vergl. E.3.2.2.4. Gleichung E 7

E.2.3. Bindungsenergie bei der Adsorption

Durch einen "Fit" der Meßwerte mit Gleichung E 3 ergibt sich aus den Messungen der Zeitkonstanten T_0 für die Bindungsenergie der Wert: $E_B = 0,251$ eV.

Nach (26) ist der Wechselwirkungsprozeß auf der Wand isotrop, und der Wandanteil der Relaxationsraten $1/T_1^{\text{Wand}}$ ist für alle $i = 0,1,2$ der gleiche.

Aus der Temperaturabhängigkeit der Raten $1/T_1$ und $1/T_2$ ergibt sich für die Bindungsenergie: $E_B = 0,242$ eV.

Ein gemeinsamer "Fit" für alle drei Raten liefert den Wert: $E_B = 0,245$ eV. Dies ist in guter Übereinstimmung mit Messungen von Cagnac und Bonnot (22). Dort wird für die Adsorptionsenergie der Wert $E_B = 0,24$ eV angegeben.

Die Übereinstimmung der Meßwerte mit der angepaßten Geraden (in logarithm. Darstellung) ist beim Fit mit Gleichung E 2 (s. Abbildung 35) etwas besser, als beim Fit mit E 3. Wenn man also die Abhängigkeit der Flugzeit t_v von der Temperatur mit berücksichtigt, erhält man für die Adsorptionsenergie: $E_B = 0,265$ eV.

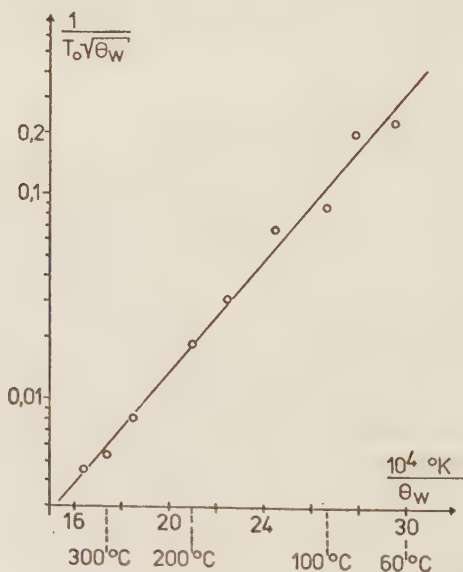


Abb. 35 :

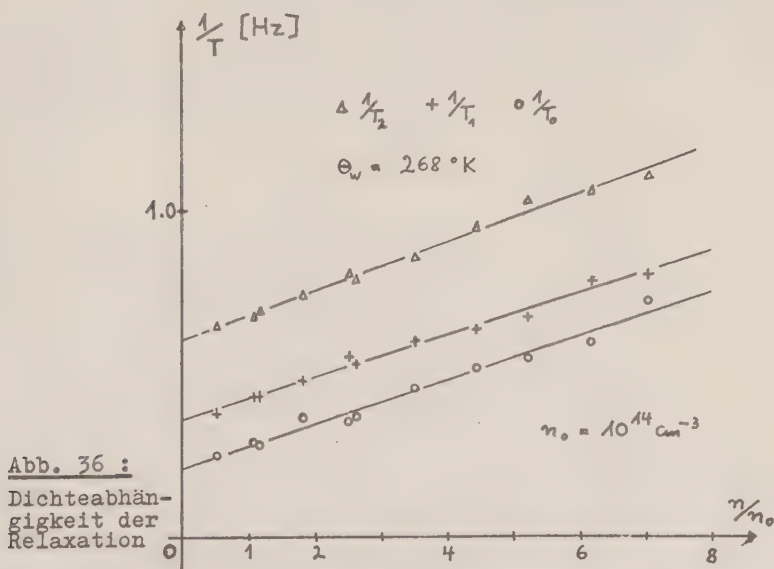
Wandtemperaturabhängigkeit $1/T_0$, korrigiert bezgl. der Änderung der mittleren Flugzeit

E.3. Abhängigkeit der Relaxation von der Quecksilber-Teilchendichte im Streugefäß

Die Dichteabhängigkeit der Relaxation wurde im schwachen Magnetfeld (H_0 ca. 9 ϕ e) untersucht, um den feldabhängigen Anteil der Relaxationsraten $1/T_1$ und $1/T_2$ möglichst klein zu halten.

E.3.1 Meßergebnisse

In Abbildung 36 ist für eine feste Wandtemperatur das Ergebnis einer typischen Meßreihe gezeigt. Die Relaxationsraten $1/T_0$, $1/T_1$ und $1/T_2$ sind gegenüber n_{Hg} aufgetragen. Man beobachtet für alle drei Relaxationsraten eine in guter Näherung lineare Abhängigkeit von der Teilchendichte.



Der Ablauf der Messungen war so, daß für jeden eingestellten Wert der Teilchendichte nacheinander alle drei Zeitkonstanten gemessen wurden, bevor durch Änderung der Reservoir-Temperatur Θ_{Hg} ein neuer Dichtewert eingestellt wurde. Um zu garantieren, daß der beobachtete Anstieg der Relaxationsraten mit wachsender Dichte nicht auf eine dichteunabhängige

zeitliche Drift zurückzuführen war, wurde bei den Messungen die Dichte zwar im allgemeinen von niedrigen Werten ausgehend schrittweise erhöht, es wurden jedoch stets auch einige Messungen mit schrittweise abnehmender Dichte durchgeführt.

In den Abbildungen 37, 38 und 39 sind die Ergebnisse der Beobachtungen bei verschiedenen Wandtemperaturen im Bereich von 135°C bis 340°C für die drei Relaxationsraten $1/T_i$ ($i = 0, 1, 2$) getrennt dargestellt. Die eingezeichneten Ausgleichsgraden wurden nach dem Fehlerquadrat-Minimum-Prinzip bestimmt.

Bei allen Messungen ist ein deutlicher Anstieg der Relaxationsraten proportional zur Teilchendichte n_{Hg} zu beobachten.

Nicht ganz so eindeutig, aber immerhin erkennbar, ist eine Abnahme der Steigungen ($d(1/T) / dn$) mit zunehmender Wandtemperatur.

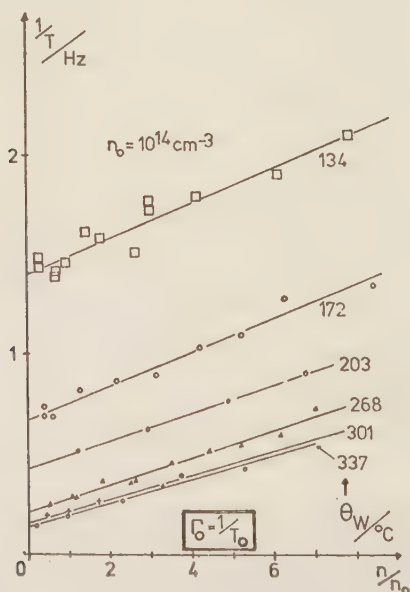


Abb. 37 :

Dichteabhängigkeit der Relaxationsrate $1/T_0$ bei verschiedenen Wandtemperaturen

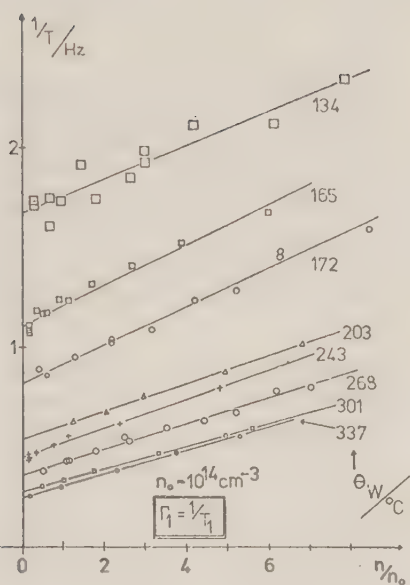


Abb. 38 :

Dichteabhängigkeit
der Relaxationsrate
 $1/T_1$

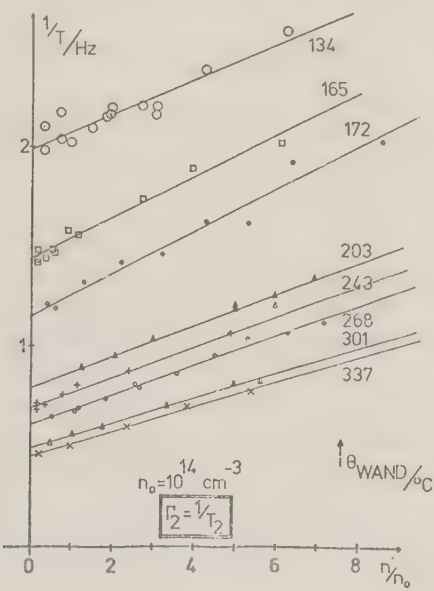


Abb. 39 :

Dichteabhängigkeit
der Relaxationsrate
 $1/T_2$

E. 3.2. Deutung der Meßergebnisse

Die beobachtete Zunahme der Relaxationsraten mit wachsender Dichte läßt zunächst zwei prinzipiell verschiedene Deutungen zu.

1) Man kann annehmen, daß der beobachtete Effekt allein durch das Hinzukommen eines bei niedrigen Dichten vernachlässigbaren echten "Volumenanteils" der Relaxation hervorgerufen wird (bedingt durch eine Wechselwirkung der Atome im Gas bei Stößen untereinander). Dazu muß man allerdings voraussetzen, daß die bereits erörterten Relaxationsanteile unabhängig von der Dichte sind.

2) Die gegensätzliche Annahme wäre eine Beschränkung bei der Interpretation der Dichte-Abhängigkeit auf die bisher betrachteten Wand- und Magnetfeldeinflüsse, d.h. die Annahme, daß bei höheren Dichten kein zusätzlicher echter Volumenanteil hinzukommt. Letzteres würde voraussetzen, daß entweder der Magnetfeld- oder der Wandanteil der Relaxation (oder beide) mit wachsender Dichte zunehmen müßte.

E. 3.2.1. Einflüsse der Magnetfeldinhomogenität bei hohen Dichten

Wie man aus den im Anhang 1 angestellten Überlegungen entnimmt, ist prinzipiell eine Änderung des Inhomogenitätsanteiles der Relaxation mit der Teilchendichte nicht auszuschließen. Dabei wäre (s. Anhang 1) eine zur Dichte proportionale Abhängigkeit zu erwarten, sobald die freie Weglänge λ im Streugefäß wesentlich kleiner wird als die Kantenlänge der Zelle. Wie die Messungen zur Magnetfeldabhängigkeit zeigen, ist die Relaxationsrate $1/T_0$ unabhängig vom Magnetfeld (s. Abbildung 26, Abschnitt E 1.1.). Dies gilt auch für Dichten, bei denen die Bedingung $\lambda \ll d$ sicher erfüllt ist (s. Abbildung 27, dort ist $n_{\text{Hg}} = 4 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $\lambda \approx 2,3 \text{ mm}$ ($d = 5 \text{ cm}$)). Die eindeutige Dichte-Abhängigkeit von $1/T_0$ kann also sicher nicht durch Magnetfeldeinflüsse erklärt

werden, man muß vielmehr annehmen, daß entweder bei steigender Dichte ein Volumenanteil oder eine Änderung des Wandanteils der Relaxation zum Tragen kommt.

Da die Raten $1/T_1$ und $1/T_2$ keine deutlich stärkere Abhängigkeit von der Dichte zeigen als $1/T_0$, kann eine dichteabhängige Änderung des Magnetfeldanteils der Relaxation also keine wesentliche Rolle spielen. Eine Änderung des Magnetfeldeanteils kann zwar nicht ganz ausgeschlossen werden, nach den Meßergebnissen kann sie aber im untersuchten Dichtebereich nicht mehr als ca. 15 % betragen.

E.3.2.2. Einflüsse des Wandanteils der Relaxation bei hohen Dichten

M.A. Bouchiat und F.Masnou-Seeuws (32) haben in einer theoretischen Arbeit (für Alkali-Atome) das Zeitverhalten von Grundzustands-Observablen bei gleichzeitigem Vorhandensein zweier Relaxationsprozesse untersucht: Relaxation auf der Wand nach Diffusion durch ein Fremdgas und Relaxation durch Stöße im Gas.

Sie haben dabei sowohl den Fall der "nackten" Wand betrachtet, für den bei Alkali-Atomen jeder Wandstoß mit der Wahrscheinlichkeit $p = 1$ zur Disorientierung führt, als auch den Fall einer mit schwach relaxierenden Materialien beschichteten Wand, wo erst über tausend Wandstöße zum Verlust der Orientierung führen.

Beim Quecksilber ist die Wandrelaxation bei "nackter" Wand wesentlich schwächer als bei Alkali-Atomen. Bei Zimmertemperatur müssen (ohne Puffergas) etwa 200 Stöße, bei 100°C Wandtemperatur bereits mehr als 1500 Stöße mit der Wand stattfinden, bis das Alignment im Grundzustand von Hg 201 auf das $1/e$ -fache des Ausgangswertes abgeklungen ist. Es herrschen also bei nicht zu niedrigen Wandtemperaturen Verhält-

nisse, die vergleichbar sind mit dem Fall von beschichteten Wänden bei Alkali-Atomen.

Sei N die Zahl der Wandstöße, die ein Atom im Mittel während der Relaxationszeit T ausführt. Wenn t_v die Flugzeit zwischen zwei Wandstößen ist, gilt:

$$N = T/t_v.$$

Der Kehrwert $\alpha = 1/N = t_v/T$ ist ein Maß für die Disorientierungs-Wahrscheinlichkeit pro Wandstoß.

Bei Hg 201 (Alignment) gilt für Wandtemperaturen

$\Theta_W > 20^\circ\text{C}$: $\alpha \leq 5 \cdot 10^{-3}$, für $\Theta_W = 100^\circ\text{C}$ ist bereits: $\alpha \approx 6 \cdot 10^{-4}$. Im ganzen untersuchten Bereich gilt also: $\alpha \ll 1$.

Solange man eine Relaxation im Gas vernachlässigt, findet eine Disorientierung der ausgerichteten Atome nur auf der Wand statt.

Bei "total depolarisierender" Wand ist $\alpha = 1$ (also für Alkali-Atome bei "nackter" Wand) und es gilt $T = t_v$. Ohne Puffergas ist $t_v \approx 10^{-4}$ sek. Beim Vorhandensein eines Puffergases muß man für t_v die Diffusionszeit einsetzen, nach der für das mittlere Verschiebungsquadrat $\langle x^2 \rangle$ gilt: $\langle x^2 \rangle \approx d^2$ (d : Kantenlänge der Zelle). Es ergibt sich dann:

$$t_v \approx \tau_{\text{Diff.}} \sim \frac{d^2 \cdot n \cdot \sigma}{\bar{c}} \quad \begin{array}{l} \sigma: \text{gaskinetischer} \\ \text{Wirkungsquerschnitt} \\ n: \text{Teilchendichte} \\ \bar{c}: \text{mittl. thermische} \\ \text{Geschwindigkeit} \end{array}$$

Da $\bar{c} = 2 \sqrt{\frac{2k\Theta}{\pi m}}$ gilt also:

$$t_v \approx \tau_{\text{Diff.}} \sim \frac{n}{\sqrt{\Theta}}, \text{ also: } T \sim \frac{n}{\sqrt{\Theta}} \quad (\alpha = 1)$$

Die Wirkung der beim optischen Pumpen von Alkali-Atomen üblicherweise benutzten Puffergase besteht also einfach in einer Verlängerung der Flugzeit zwischen zwei Wandstößen, was eine Verlängerung der Relaxationszeiten bewirkt. Bei steigender Puffergasdichte nimmt die Relaxationsrate $1/T$ proportional zu $1/n$ ab (sofern keine Relaxation durch Stöße im Gas stattfindet).

Dies ist anders bei einer guten Beschichtung (Alkali-Atome) oder im Fall von Hg 201 ohne Beschichtung der Wand - hier gilt immer $\alpha \ll 1$.

Eine detaillierte Untersuchung (32) zeigt, daß für $\alpha \ll 1$ bis zu Dichten hin, für die die freie Weglänge $\lambda \ll d$ ist, der Anteil der Wandrelaxation trotz der Verlangsamung der Flugzeit t_v konstant bleibt. Dabei ist vorausgesetzt, daß sich durch eine Erhöhung der Dichte der eigentliche Relaxationsprozeß auf der Wand nicht ändert.

Die Verweilzeit auf der Wand (t_s) bestimmt den Wert von α , d.h. die Zahl der Wandstöße, die bis zum Verlust der Ausrichtung stattfinden müssen.

Wenn t_s konstant ist, würde man nach Abschnitt E 2.2. erwarten, daß mit steigender Dichte wegen der Änderung des Verhältnisses t_s/t_v die Wandrelaxation proportional zu $1/t_v$ abnimmt. Das Verhältnis $t_s/(t_s+t_v)$ ist (26) ein statistischer Faktor, den man als Verhältnis der Zahl der Atome, die gerade mit der Wand stoßen zur Zahl der Atome, die sich im Volumen befinden, interpretieren kann oder als "effektive" Wechselwirkungszeit, d.h. als den Bruchteil der Zeit, den ein Atom während eines Prozesses: Flug durch die Zelle von Wand zu Wand und Stoß mit der Wand auf der Wand verbringt. Bei hohen Dichten darf als statistischer Faktor nicht einfach der gleiche Ausdruck mit der Diffusionszeit statt der freien Flugzeit angesetzt werden. Dies ist nur zulässig bei niedrigen Dichten, wo zu jedem Flug durch die Zelle als Abschluß genau ein Wandstoß gehört. Das Konstantbleiben des Wandanteils der Relaxation kann man sich anschaulich so erklären, daß bei hohen Dichten ein Atom, welches einmal die Wand erreicht hat, nicht auf direktem Weg in das Innere des Volumens zurückkehren kann. Es stößt vor der Wand in einem Bereich der Länge λ mit anderen Atomen zusammen und wird einige Male wieder auf die Wand zurückgelenkt, bevor es ihm gelingt, den Bereich vor der Wand wieder zu verlassen. Somit gehört zu jeder

Diffusionswanderung durch das Innere der Zelle (Zeitdauer: $\tau_{\text{Diff.}}$) bei hoher Dichte als Abschluß nicht genau ein Wandstoß, sondern mehrere Stöße. Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Atom, das sich von der Wand entfernen will, vor der Wand durch einen Stoß mit einem weiteren Atom "reflektiert" und auf die Wand zurückgelenkt wird, ist genau wie die Diffusionszeit proportional zur Teilchendichte. Als statistischer Faktor ist bei hoher Dichte das Verhältnis der Verweilzeit auf der Wand zur Diffusionszeit zu betrachten, wobei man als "Verweilzeit" das Produkt aus der Verweildauer t_g mit der Zahl der Wandstöße N beim Aufenthalt im Bereich vor der Wand ansetzen muß. Damit wird der statistische Faktor unabhängig von der Dichte. Diese Betrachtung gilt nur, solange $N \ll 1/\alpha$ ist. Sobald die Zahl der Stöße, die ein Atom während seines Aufenthaltes im Nahbereich der Wand mit dieser ausführt, nicht mehr klein ist gegenüber der zur Relaxation notwendigen Zahl von Stößen, sinkt die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein ausgerichtetes Atom die Wand ausgerichtet wieder verläßt. Vom Inneren des Volumens her betrachtet, wird dann die Wand total-depolarisierend. Die Relaxationsrate wird daher bei sehr hohen Teilchendichten, für die ein Atom die zur Relaxation notwendige Zahl von Stößen vor der Wand erfährt, proportional zu $1/n$ abnehmen.

Beim Vergleich der bei den Messungen (im Bereich bis zu einer Teilchendichte von $n_{\text{Hg}} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$) vorliegenden Verhältnisse mit den bei (32) angenommenen Voraussetzungen läßt sich zeigen, daß eine Beeinflussung des Wandanteils der Relaxation durch Diffusionseffekte im untersuchten Bereich nicht zu erwarten ist. Bei (32) wird nachgewiesen, daß für $\alpha \ll 1$ die Relaxationsrate $1/T$ solange unabhängig von der Dichte ist, als der Parameter $\mu \cdot R$ ($\approx \mu \cdot d/2$) $\ll 1$ ist (die Rechnung wurde für eine kugelförmige Zelle vom Radius R durchgeführt).

Für die gegebenen Verhältnisse ist:

$$\mu \approx \frac{3\alpha}{\lambda(2-\alpha)} = \frac{3\alpha \sqrt{2} \sigma n}{(2-\alpha)}$$

λ : freie Weglänge (s. Abbildung 40). In der Tabelle 4 sind für Wandtemperaturen von 0°C bis 350°C die bei Hg 201 geltenden Werte für $\alpha(\theta_w)$ und $\mu \cdot d$ (n_{Hg}) angegeben. Wie man sieht, ist im ganzen Meßbereich ($\theta_w > 100^\circ\text{C}$) $\mu \cdot d < 5 \cdot 10^{-2}$. Ein Dichteefluß auf den Wandanteil der Relaxation ist also erst bei höheren Dichten zu erwarten (etwa bei $n_{\text{Hg}} \approx 5 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$). Möglicherweise deutet sich für die niedrigeren Wandtemperaturen in den Messungen ein leichter Einfluß bei den höchsten Dichtewerten ($n_{\text{Hg}} \approx 10^{15} \text{cm}^{-3}$) an. Der prinzipielle Verlauf der Relaxationsraten für höhere Dichten müßte etwa so aussehen, wie in Abbildung 41 skizziert.

Tabelle 4 $(n' = \frac{n_{\text{Hg}}}{10^{14} \text{cm}^{-3}} , \quad \lambda' = \frac{\lambda}{\text{cm}})$

$\theta_w / ^\circ\text{C}$	α	$\mu \cdot d$ ($n' = 1$) ($\lambda' = 0,9$)	$\mu \cdot d$ ($n' = 5$) ($\lambda' = 0,18$)	$\mu \cdot d$ ($n' = 10$) ($\lambda' = 0,09$)
0	$1 \cdot 10^{-2}$	$8,38 \cdot 10^{-2}$	0,42	0,84
20	$6,9 \cdot 10^{-3}$	$5,7 \cdot 10^{-2}$	0,29	0,58
30	$3,5 \cdot 10^{-3}$	$2,9 \cdot 10^{-2}$	0,15	0,29
50	$1,9 \cdot 10^{-3}$	$1,6 \cdot 10^{-2}$	0,08	0,16
100	$5,6 \cdot 10^{-4}$	$4,7 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$	$4,7 \cdot 10^{-2}$
150	$2,2 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$	$9,2 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$
200	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$8,3 \cdot 10^{-4}$	$4,2 \cdot 10^{-3}$	$8,3 \cdot 10^{-3}$
250	$5,5 \cdot 10^{-5}$	$4,6 \cdot 10^{-4}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$4,6 \cdot 10^{-3}$
300	$3,3 \cdot 10^{-5}$	$2,8 \cdot 10^{-4}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$
350	$2,1 \cdot 10^{-5}$	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$8,8 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$

Nach den angestellten Überlegungen kann somit als Ursache für die beobachtete Dichteabhängigkeit der Relaxation nur ein zusätzlicher Relaxationsanteil durch Stöße in der Gasphase - im gegebenen Fall Stöße mit dem "Puffergas" Hg 202 - angenommen werden.

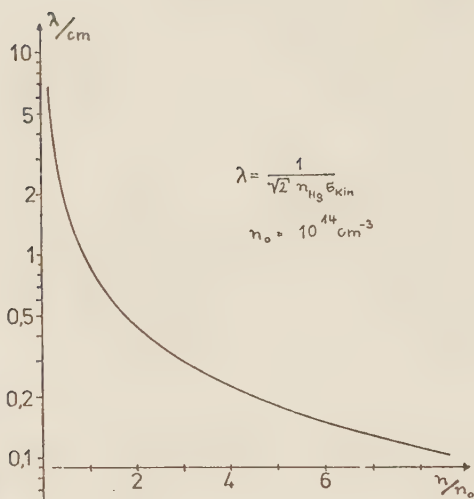


Abb. 40 :

Mittlere freie
Weglänge für gas-
kinetische Stöße

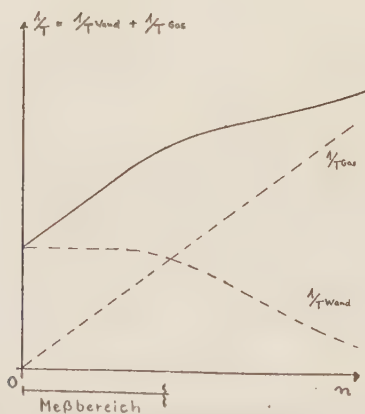


Abb. 41 :

Prinzipieller
Verlauf der
Relaxationsraten
bei Wand- und Gas- Anteil in Abhängigkeit von der
Teilchendichte (entsprechend (32)).

E.3.2.3. Relaxation durch Stöße im Gas

E.3.2.3.1. Stoßpartner

Relaxation im Gas kann prinzipiell durch Stöße mit den verschiedensten Partnern hervorgerufen werden.

1) Stöße mit Quecksilberatomen im Grundzustand:

Die Isotopenzusammensetzung der Zellenfüllung ist im Abschnitt C 3.3. angegeben. Die ungeraden Isotope Hg 201 ($I = 3/2$) und Hg 199 ($I = 1/2$) besitzen einen Kernspin, jedoch ist bei thermischen Energien ein direkter Kernspin-Austausch zwischen Atomen im Grundzustand sicher zu vernachlässigen. Falls es dennoch zu einem Spinaustausch z.B. während einer vorübergehenden Bindung zwischen Hg 201 einerseits und Hg 201 bzw. Hg 199 andererseits kommen würde, könnte dadurch im Mittel über alle Atome kein Beitrag zur Relaxation geleistet werden¹⁾.

Es ist daher nicht sinnvoll, zwischen Stößen mit geraden oder ungeraden Isotopen ($I \neq 0$) zu unterscheiden: für Stöße mit Quecksilberatomen im Grundzustand wird der Einfluß aller geraden und ungeraden Isotope auf die Relaxation als etwa gleich angenommen. Da die überwiegende Zahl von Stößen zwischen Hg 201 und Hg 202 stattfinden, brauchen nur diese näher betrachtet zu werden.

2) Bei Stößen mit angeregten Quecksilberatomen könnten die einzelnen Isotope prinzipiell wegen der Isotopieverschiebung der Absorptions- bzw. Emissionslinie ($\lambda = 2537 \text{ \AA}$) unterschiedliche Beiträge zur Relaxation leisten. Die Transferrate der Anregungsenergie sollte von der Übereinstimmung der Energiedifferenz zwischen Grund- und Anregungszustand bei Hg 201 bzw. dem entsprechenden Stoßpartner abhängen.

1) Ein Übergang der Kernspin-Ausrichtung von einem Hg 201-Atom zu einem anderen würde die Gesamtausrichtung in der Zelle nicht beeinflussen. Ein Alignment-Übertrag von Hg 201 auf Hg 199 (im Grundzustand) ist nicht möglich, da wegen $I_{\text{Hg 199}} = 1/2$ das "Alignment" von Hg 199 einer isotropen Verteilung entspricht. (Dies wäre anders im Falle der Polarisation).

Da jedoch (abgesehen von der geringen Erzeugung angeregter Atome durch den schwachen Taststrahl) die Relaxation ins Dunkle beobachtet wurde, kann man davon ausgehen, daß nach Ausschalten des Pumplichtes keine merkliche Anzahl angeregter Atome mehr vorhanden ist (Lebensdauer des angeregten Zustands: $T_s(^3P_1) \approx 1,2 \cdot 10^{-7} \text{ sek}$).

3) Stöße mit Quecksilbermolekülen:

Im untersuchten Dichtebereich $n_{\text{Hg}} \leq 8 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ist die Zahl von (gaskinetischen) Dreierstößen,¹⁾ die ein Quecksilberatom pro Sekunde erleidet: $Z_3 \leq 0,2 \text{ sek}^{-1}$ gegenüber $Z_2 \approx 2,5 \cdot 10^5 \text{ sek}^{-1}$ (Zweierstöße). Da die Bildung von Hg_2 -Molekülen überwiegend über Prozesse abläuft, bei denen Dreierstöße eine wesentliche Rolle spielen (33) kann der Anteil von vorhandenen Hg_2 -Molekülen nur verschwindend gering sein.²⁾ Daten über den Anteil von Hg_2 -Molekülen im Gas bei niedrigen Dampfdrücken liegen nicht vor. Bei einem Dampfdruck von ca. 7,7 Torr ($n_{\text{Hg}} \approx 2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) wird bei (34) für das Verhältnis $n_{\text{Hg}_2}/n_{\text{Hg}}$ der Wert $8,7 \cdot 10^{-5}$ angegeben. Die Zahl von Dreierstößen ist bei diesem Druck bereits: $Z_3 \approx 10^4 \text{ sek}^{-1}$. Für den untersuchten Druckbereich ($P_{\text{Hg}} < 5 \cdot 10^{-2} \text{ Torr}$) kann daher angenommen werden, daß Relaxation durch Stöße von Hg 201 mit Quecksilbermolekülen nicht berücksichtigt werden muß. Sie kann jedoch durchaus bei höheren Dich-

- - - - -

1) Da $Z_2 = 1/t'_2 = \bar{c}/\lambda$, ist die gesamte Stoßzeit pro Sekunde für ein Atom im Mittel: $d_{\text{seff}} = Z_2 \cdot t'_2$ (t'_2 : Stoßdauer). Nach der Zeit t ist ein Dreierstoß im Mittel dann erfolgt, wenn gilt: $d_{\text{seff}} \cdot t \geq t'_3$. Also ist $t'_3 \approx t'_2/d_{\text{seff}}$ die Zeit zwischen zwei Dreierstößen und die Zahl der Dreierstöße pro Sekunde ist $Z_3 = 1/t'_3 \approx Z_2^2 \cdot t'_2$ (vergl. (39) s. 400 f). Da $Z_2 \sim 1/\lambda \sim n_{\text{Hg}}$, ist:

$$Z_3 \sim n_{\text{Hg}}^2$$

2) Die von (33) untersuchte Hg_2 -Molekülbildung in Gemischen aus Hg und N_2 verläuft über eine Reihe von Stoßprozessen angeregter Hg-Atome mit N_2 -Molekülen und Hg-Atomen im Grundzustand. Bei den dort herrschenden Bedingungen (Dampfdruck: $P(\text{N}_2) \geq 50 \text{ Torr}$) spielen Dreierstöße eine entscheidende Rolle.

ten und beim Vorhandensein von Fremdgasen (Puffergasen) wirksam werden, und ein Einfluß ist - wegen des Fehlens von brauchbaren Angaben über die Moleküldichte bei den gegebenen Bedingungen - nicht mit letzter Sicherheit auszuschließen. Dies muß bei der Interpretation der Meßergebnisse bedacht werden.

4) Verunreinigungen:

Es sollte angemerkt werden, daß Verunreinigungen in der Zelle die Meßergebnisse erheblich verfälschen können. Bei der Präparation des Streugefäßes wurde daher besonderer Wert auf Sauberkeit gelegt.

Wegen des zur Füllung benutzten Verfahrens - das Quecksilber wurde aus einer Quecksilber-Nitrat-Lösung elektrolytisch als Amalgam auf einer Goldelektrode niedergeschlagen - kann nicht ganz ausgeschlossen werden, daß in geringem Maße Bestandteile des Elektrolysebades bzw. Zersetzungsprodukte in die Amalgamschicht mit eingeschlossen werden, so daß bei dem nachfolgenden Wasch- und Trocknungsprozeß sie nicht mehr abgelöst werden können. Soweit sie während der mehrstündigen Vorbereitung zur Destillation im Vakuum nicht bereits bei der Trocknungstemperatur (ca. 30°C) an die Oberfläche diffundieren und abgepumpt werden, ist es möglich, daß ein Anteil beim Destillationsvorgang (Destillationstemperatur $\theta > 300^\circ\text{C}$) mit in die Zelle gelangt. Wenn der Dampfdruck der Verunreinigung nicht deutlich über dem des Quecksilbers liegt, ist es ohne Verlust der Quecksilberfüllung dann nicht mehr möglich, die Verunreinigung durch Abpumpen zu entfernen.

Wesentlich günstiger wäre es, wenn das für die Füllung des Streugefäßes verwandte Quecksilber beim Herstellungsprozeß in einem Massentrenner direkt auf einer als Auffänger benutzten Goldelektrode niedergeschlagen werden könnte. Dies ist jedoch nicht gut möglich, wenn man eine definierte Mischung zweier Isotope als Zellenfüllung verwenden möchte.

Gasförmige Verunreinigungen, wie N_2 oder O_2 , können ausgeschlossen werden (soweit sie nicht beim Abschmelzen des Streugefäßes von der Vakuum-Apparatur aus der Zellenwand freigesetzt werden), da die Zelle nach dem Destillationsvorgang auf ca. 10^{-5} Torr abgepumpt wurde.

E.3.2.3.2 Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung des Alignments von Hg 201 durch Stöße mit Quecksilberatomen im Grundzustand

Es ist üblich, bei Relaxation durch Stöße im Gas über die Beziehung: $1/T_{\text{Gas}} = n_s \cdot \langle v_{\text{rel}} \rangle \cdot \sigma^{\text{al}}$ einen Wirkungsquerschnitt σ^{al} für die Zerstörung des Alignments beim Stoß zwischen den ausgerichteten Atomen und den zugehörigen Stoßpartnern (Teilchendichte: n_s) zu definieren. Dabei ist $\langle v_{\text{rel}} \rangle = \bar{v}_{\text{rel}} = 2 \sqrt{8k\Theta/\pi m}$ die mittlere Relativgeschwindigkeit beim Stoß.

Aus den Steigungen der in den Abbildungen 37, 38 und 39 für jeweils feste Wandtemperatur (d.h. feste Gastemperatur) gegenüber der Dichte aufgetragenen Relaxationsraten kann man die Wirkungsquerschnitte $\sigma_0, \sigma_1, \sigma_2$ für die Zerstörung der Tensorkomponenten $S_{2,0}^{(a)}, S_{2,1}^{(a)}, S_{2,2}^{(a)}$ bestimmen. Die Wirkungsquerschnitte wurden unter der Voraussetzung berechnet, daß Quecksilber-Quecksilberstöße für die Relaxation verantwortlich sind. Als Teilchendichte n_s wurde die Gesamtteilchendichte n_{Hg} mit der entsprechenden Korrektur (s. Abschnitt C 5) für die verschiedenen Temperaturen von Zelle und Quecksilberreservoir eingesetzt. In den Abbildungen 42, 43 und 44 sind die Ergebnisse gegenüber der Wandtemperatur Θ_W aufgetragen. Die so¹⁾ bestimmten Werte der Wirkungsquerschnitte liegen zwischen $1,5 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ und $3 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ ($\Theta_W \geq 135^\circ \text{C}$). Zu hohen Wand- bzw. Gastemperaturen hin nehmen die Wirkungsquerschnitte ab.

- - - -

1) Wollte man Stöße mit Quecksilbermolekülen für die Relaxation verantwortlich machen, wären die sich ergebenden Wirkungsquerschnitte mindestens um einen Faktor 10^5 größer. Entsprechendes gilt für Stöße mit Verunreinigungen. Dabei ist anzumerken, daß "komplexbildende" Verunreinigungen, d.h. solche, die mit Quecksilberatomen für längere Zeit einen Quasi-Molekül-Komplex bilden, außergewöhnlich große Wirkungsquerschnitte haben können (38).

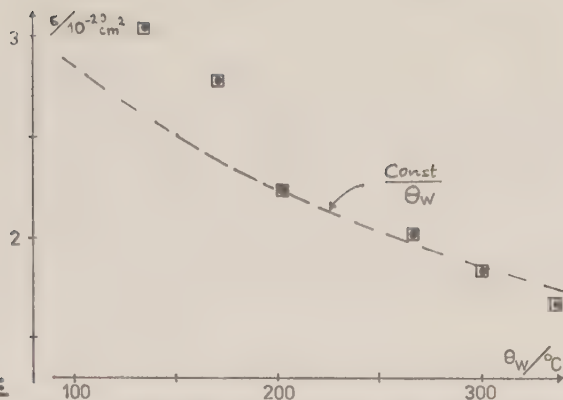


Abb. 42 :

Wirkungsquerschnitt σ_0 in Abhängigkeit von der Wandtemperatur (Gastemperatur)



Abb. 43 :

Wirkungsquerschnitt σ_1

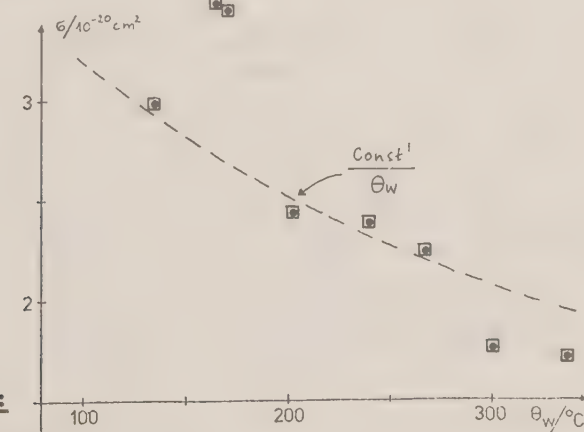


Abb. 44 :

Wirkungsquerschnitt σ_2

E.3.2.3.3. Überlegungen zum Ursprung der Stoßrelaxation

Die Relaxation auf der Wand geschieht (26) durch Wechselwirkung des Kern-Quadrupolmomentes von Hg 201 mit dem elektrischen Feldgradienten auf der Wand. Dabei wird angenommen, daß der Feldgradient durch die Deformation der Elektronenhüllen der auf der Wand adsorbierten Atome erzeugt wird. Als Bindungsmechanismus zwischen Quecksilberatomen und Wandatomen kann man von der Waals-Wechselwirkung annehmen.

Das Quecksilberisotop Hg 199 besitzt kein Kern-Quadrupolmoment, seine Wandrelaxation ist sehr viel schwächer als die von Hg 201, sofern die Wand nicht mit paramagnetischen Verunreinigungen bedeckt ist (beim Hg 199 erfolgt die Relaxation durch die Wechselwirkung des magnetischen Kern-Dipolmomentes mit statistisch fluktuierenden Magnetfeldern auf der Wand, hervorgerufen durch paramagnetische Wandatome).

Da das Isotop Hg 201 ebenfalls ein magnetisches Kern-Dipolmoment besitzt, muß im Prinzip auch ein magnetischer Anteil der Relaxation vorhanden sein, der jedoch wegen der starken Quadrupol-Relaxation nicht beobachtbar ist. Ein solcher magnetischer Anteil sollte außerdem bei Hg 201 wesentlich schwächer sein, als bei Hg 199 (22), da das gyromagnetische Verhältnis von Hg 201 kleiner ist als das von Hg 199: $\gamma_{201}/\gamma_{199} \approx 0,4$. (Die magnetischen Kernmomente sind bei beiden Isotopen von gleicher Größenordnung).

Es ist daher auch nicht zu erwarten, daß die magnetische Wechselwirkung für die Relaxation bei Stößen im Gas verantwortlich ist. Es erscheint vielmehr sinnvoll, als Ursache der Stoßrelaxation wie auf der Wand die Wechselwirkung des Kern-Quadrupolmomentes mit dem elektrischen Feldgradienten anzunehmen, der beim Stoß durch die Deformation der Elektronenhüllen erzeugt wird.

Diese Vorstellung würde nahelegen, daß bei Hg 199 die Relaxation durch Gasstöße schwächer sein sollte als

bei Hg 201, sofern keine paramagnetischen Stoßpartner vorhanden sind.

Eine Untersuchung der Dichteabhängigkeit der Relaxation bei Hg 199 könnte daher evtl. Aufschluß darüber geben, ob die Stoßrelaxation bei Hg 201 magnetischen Ursprunges ist, oder ob es sich, wie angenommen, um Quadrupol-Relaxation handelt. (Interessant wäre in diesem Zusammenhang auch eine Untersuchung der Relaxation beider Isotope bei Anwesenheit paramagnetischer Fremdgase).

Die bei Wandstößen oder Gasstößen erzeugten elektrischen Feldgradienten sollten nicht wesentlich verschieden sein. Man kann daher annehmen, daß die Wechselwirkungsenergie in beiden Fällen von der gleichen Größenordnung ist. Starke Unterschiede in der Relaxationswahrscheinlichkeit pro Wandstoß (α_w) und der Relaxationswahrscheinlichkeit pro Gasstoß (α_{Gas}) kann man durch die unterschiedliche Wechselwirkungsdauer erklären.

Die Relaxationswahrscheinlichkeit pro Stoß im Gas definiert man entsprechend Abschnitt E 3.2.2.:

$$\alpha_{\text{Gas}} = t_v' / T_{\text{Gas}}$$

Dabei ist T_{Gas} der reine Volumenanteil der Relaxation und t_v' die freie Flugzeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Gasstößen.

Es gilt: $t_v' = \lambda / \bar{c}$ (für gaskinetische Stöße).

Da per Definition $1/T_{\text{Gas}} = n_{\text{Hg}} \cdot \bar{v}_{\text{rel}} \cdot \sigma^{\text{al}}$ folgt im gegebenen Fall mit ($\bar{v}_{\text{rel}} = \sqrt{2} \cdot \bar{c}$):

$$(E4) \quad \alpha_{\text{Gas}} = \sigma^{\text{al}} / \sigma_{\text{kin}} \quad (\lambda = 1 / \sqrt{2} \cdot n_{\text{Hg}} \cdot \sigma_{\text{kin}})$$

In Tabelle 5 sind zum Vergleich α_{Gas} und α_w für verschiedene Gas- bzw. Wandtemperaturen angegeben. Die Wechselwirkungsdauer bei Wandstößen ist abhängig von der Verweilzeit auf der Wand (t_s). Die Wechselwirkungsdauer beim Stoß im Gas hängt ab von der Aufenthaltsdauer der stoßenden Atome (t_s^{Gas})

in einem Abstand voneinander, der kleiner ist, als die Reichweite der Wechselwirkung.

Tabelle 5++)

$\Theta_w / ^\circ\text{C}$	$(n_{\text{Hg}}^i = 8 \cdot 10^{14}) \cdot \text{sek}$ $(1/T_{\text{Gas}})$	$(n_{\text{Hg}}^i = 0) \cdot \text{sek}$ $(1/T_{\text{Wand}})$	$\alpha_{\text{Gas}} \cdot 10^6$	$\alpha_w \cdot 10^5$	$\alpha_w / \alpha_{\text{Gas}}$
135	0,7	1,15	3,82	28	73,3
165	0,83 ⁺	0,72	4,37	17	38,9
171	0,76	0,67	3,98	15,4	38,7
203	0,65	0,45	3,06	10,1	33,0
240	0,61 ⁺	0,38	2,97	6,03	20,3
268	0,56		2,65	4,61	17,4
301	0,49		2,25	3,26	14,5
337	0,485		2,16	2,37	11,0

$$n_{\text{Hg}}^i = n_{\text{Hg}} \cdot \text{cm}^3$$

Die Werte $1/T_{\text{Gas}}$ sind jeweils die Mittelwerte aus den drei Relaxationsraten $1/T_{\text{Gas}}^i$, $i = 0, 1, 2$.

+) Mittelwert aus den transversalen Relaxationsraten ($i = 1, 2$) allein
++) Für die Berechnung von α_{Gas} wurde angenommen, daß die freie Weglänge durch den gaskinetischen Wirkungsquerschnitt bestimmt wird.

Die Verweilzeit auf der Wand ist (vgl. Abschnitt E.2.2.):

$$(E\ 5) \quad t_s = t_0 \cdot \exp(E_B/k\Theta_w),$$

nach (22), (26), (35), gilt: $t_0 \approx 10^{-12} \text{sek.}$

Danach läßt sich die Verweilzeit für verschiedene Wandtemperaturen abschätzen, wenn man die in Abschnitt E.2.2. bestimmte Bindungsenergie E_B in die Formel E 5 einsetzt (s. Tabelle 6).

Tabelle 6 +) $t_0 = 10^{-12}$ sek angenommen

$\Theta_W / ^\circ\text{C}$	$t(t_s^W/\text{sek}) \cdot 10^{10}$	$(t_s^{\text{Gas}}/\text{sek}) \cdot 10^{12}$
20	140	6,0
50	56	5,7
100	18	5,4
200	3,6	4,8
300	1,3	4,4
350	0,88	4,1

Die Stoßdauer für Gasstöße (s. ebenfalls Tabelle 6) läßt sich abschätzen, wenn man eine Reichweite der Wechselwirkung festlegt. Für eine grobe Abschätzung wird vorausgesetzt, daß die Relaxationswechselwirkung nur zum Tragen kommt, wenn der Kernabstand der Atome beim Stoß kleiner als ca. $10 \text{ \AA}$ wird. Dabei wird für die Verweildauer im Wechselwirkungsbereich angenommen, daß die Atome bei jedem Stoß eine mittlere Strecke von ca. $15 \text{ \AA}$ ¹⁾ innerhalb des Wechselwirkungsbereiches zurücklegen und zwar mit thermischer Geschwindigkeit. Die Aufenthaltsdauer im WW-Bereich ist t_s^{Gas} .

1) Quecksilberatome verhalten sich beim Stoß nicht wie glatte Kugeln, sondern üben durch van der Waals-Wechselwirkung eine schwache Anziehungskraft aufeinander aus, die erst bei kleinen Kernabständen in Abstoßung übergeht. Bei (34) wird für die Tiefe des Wechselwirkungspotentials ein Wert von 90 meV angegeben. In Abbildung 45 ist der prinzipielle Potentialverlauf wiedergegeben. Das Potential gilt in der dargestellten Form nur für den zentralen Stoß, bei nicht zentralem Stoß sind die Atome einem effektiven Potential ausgesetzt, das sich aus dem in Abb. 45 dargestellten Potential und dem (abstoßenden) Zentrifugalpotential des Systems der beiden stoßenden Atome zusammensetzt (Abb. 46). Die Bahnen der stoßenden Atome verlaufen wegen der Wechselwirkung nicht geradlinig, für eine feste Relativenergie (-Geschwindigkeit) ist der Bahnverlauf abhängig vom Drehimpuls des Systems der beiden Atome (Stoßparameter S) (s. Abb. 47).

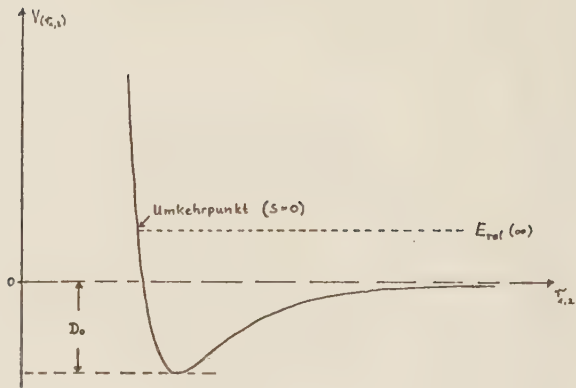


Abb. : 45

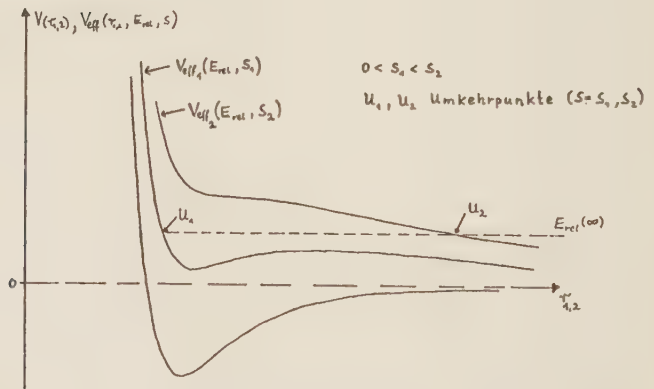


Abb. : 46 .

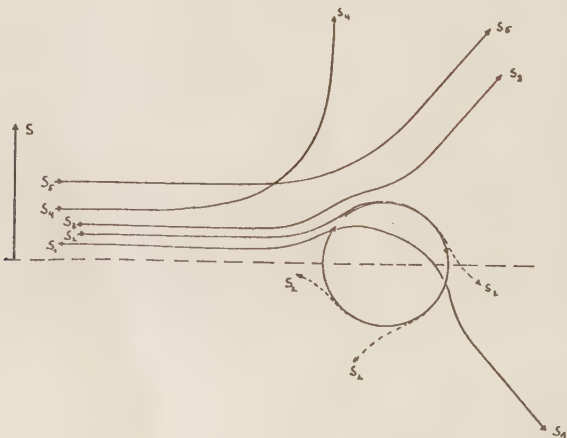


Abb. : 47

Für die Relaxation ist der relative Anteil der Wechselwirkungszeit an der Gesamtzeit (d.h. die Wechselwirkungszeit pro Zeiteinheit) entscheidend.

Die Zahl gaskinetischer Stöße, die ein Atom pro Sekunde im Gas erleidet, ist $z_g = 1/t_v' = c/\lambda$, die Stoßzeit $t_s^{Gas} \approx 15 \text{ \AA} / \bar{v}_{rel}$. Daraus folgt für die Wechselwirkungszeit pro Sekunde:

$$t_s^{Gas}/t_v' := d_w^{Gas} \approx 15 \text{ \AA} \cdot \sigma_{kin} \cdot n_{Hg},$$

d. h. die Wechselwirkungszeit ist proportional zur Teilchendichte.

Bei einer Wandtemperatur von ca. 170°C sind der Wandanteil der Relaxation und der Dichteanteil für die Teilchendichte von $8 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ungefähr gleich groß.

($1/T_{Wand} \approx 1/T_{Gas} \approx 0,7 \text{ sek}^{-1}$) Dies ermöglicht einen Vergleich der Wechselwirkungszeiten pro Zeiteinheit für Wandrelaxation und Gasrelaxation und somit einen Vergleich der Wechselwirkungen selbst.

Für die Teilchendichte $n_{Hg} = 8 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ erhält man bei der Wandtemperatur $\Theta_w = 170^\circ \text{C}$ einen Wert $d_w^{Gas} \approx 10^{-6}$, wobei der gaskinetische Wirkungsquerschnitt zur Berechnung zugrunde gelegt wurde. Dies ist innerhalb des betrachteten Modells jedoch nicht sehr sinnvoll. Entsprechend der angenommenen Reichweite der Wechselwirkung (vergl. S. 87) definiert man für die Stoßrelaxation besser: $\sigma_{ww} = 4\pi r_{ww}^2 \approx 4\pi \cdot (5 \text{ \AA})^2 \approx 4 \sigma_{kin}$. Dann wird $\lambda' = \lambda_{kin}/4$ und $z_g = 1/t_v' = 4 z_{g,kin}$, und man erhält für die Wechselwirkungszeit pro Zeiteinheit: $d_w^{Gas} \approx 4 \cdot 10^{-6}$.

Die Zahl der Wandstöße, die ein Atom pro Sekunde mit der Wand ausführt, ist $z_w := 1/t_v$, die Stoßdauer ist gleich der Verweilzeit auf der Wand (t_s). Damit ergibt sich für die Wechselwirkungszeit pro Sekunde bei Wandstößen: $d_w^W := t_s/t_v$ und bei 170°C Wandtemperatur ein Wert¹⁾ $d_w^W \approx 2,3 \cdot 10^{-6}$.

Die Tatsache, daß diese recht grobe Abschätzung für Wand- und Stoßrelaxation bei gleicher Größe der Re-

1) vergl. S. 86 und Tabelle 6 : für t_0 wurde 10^{-12} sek angenommen, was jedoch nur als Richtwert zu verstehen ist.

laxationsanteile Wechselwirkungszeiten von der gleichen Größenordnung liefert, ist ein Hinweis dafür, daß die Annahme eines gleichartigen Relaxationsmechanismus und vergleichbarer Wechselwirkungsenergie gerechtfertigt ist.

Die auf S. 84 über die Art der Relaxation bei Stößen im Gas angestellten Überlegungen sind auch in Übereinstimmung mit (40), wo die Kernspin-Relaxationsursachen in monoatomaren Gasen mit einer $^1\text{S}_0$ -Elektronenhülle betrachtet werden.

Bei Kernen, die ein magnetisches Kern-Dipolmoment besitzen, aber kein Kern-Quadrupolmoment ($I = 1/2$), wird die direkte magnetische Wechselwirkung der Kerne als Ursache der Relaxation angenommen. Bei Kernen mit Quadrupolmoment ($I \geq 1$) sollte die Quadrupolrelaxation überwiegen.

E.3.2.3.4. Beschreibung der Quadrupol-Relaxation

Die Zeitentwicklung des atomaren Systems im Magnetfeld unter der Einwirkung der Störung beim Stoß wird durch die Bewegungsgleichung für den statistischen Operator (40) beschrieben:

$$\frac{1}{i} \frac{d\rho}{dt} = - [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1(t), \rho]$$

Dabei ist $\mathcal{H}_1(t)$ der Hamiltonoperator der Störung, von dem vorausgesetzt wird, daß es sich um eine stationäre Zufallsfunktion handelt. Im Wechselwirkungsbild nimmt die Bewegungsgleichung die Form an:

$$\frac{1}{i} \frac{d\tilde{\rho}}{dt} = - [\tilde{\mathcal{H}}_1(t), \tilde{\rho}]$$

$$(\tilde{\rho} = e^{i\mathcal{H}_0 t} \rho e^{-i\mathcal{H}_0 t}; \quad \tilde{\mathcal{H}}_1(t) = e^{i\mathcal{H}_0 t} \mathcal{H}_1(t) e^{-i\mathcal{H}_0 t})$$

Als Näherung in zweiter Ordnung ergibt sich (40) :

$$\frac{d\tilde{\rho}}{dt} = -i [\tilde{\mathcal{H}}_1(t), \tilde{\rho}(0)] - \int_0^t [\tilde{\mathcal{H}}_1(t), [\tilde{\mathcal{H}}_1(t'), \tilde{\rho}(0)]] dt'$$

und mit der Variablentransformation $\tau = t - t'$ folgt daraus:

$$\frac{d\tilde{\rho}}{dt} = -i [\tilde{\mathcal{H}}_1(t), \tilde{\rho}(0)] - \int_0^t [\tilde{\mathcal{H}}_1(t), [\tilde{\mathcal{H}}_1(t - \tau), \tilde{\rho}(0)]] d\tau$$

Bei einer statistisch fluktuierenden Störung kann angenommen werden, daß im Mittel über das ganze atomare Ensemble $\overline{\mathcal{H}_1(t)} = 0$ ist. Unter einer Reihe von Annahmen, die im wesentlichen auf der kurzen Dauer der Wechselwirkung beim Stoß (verglichen mit $\hbar/\Delta E_{\text{ww}}$) und der kurzen Korrelationszeit der Störung $\mathcal{H}_1(t)$ beruhen (40), kann die Bewegungsgleichung näherungsweise in die einfachere Form gebracht werden:

$$\frac{d\tilde{\mathcal{G}}}{dt} = - \int_0^\infty \overline{[\tilde{\mathcal{H}}_1(t), [\tilde{\mathcal{H}}_1(t-\tau), \tilde{\mathcal{G}}(t)]]} d\tau$$

Dabei steht jetzt $\tilde{\mathcal{G}}$ für den über das ganze atomare Ensemble gemittelten statistischen Atom-Operator.

Von dieser Gleichung ausgehend, wird bei (26) die Relaxation von Hg 201 durch Stöße mit der Wand des Streugefäßes betrachtet, wobei die Wechselwirkung des Kern-Quadrupolmomentes der Hg 201 Atome mit dem Gradienten des elektrischen Feldes auf der Wand als "Stör-Wechselwirkung" angenommen wird.

Da die Störung nur während des Aufenthaltes der Atome auf der Wand stattfindet, wird bei (26) zusätzlich in die Formel der statistische Faktor $t_s/(t_s+t_v)$ eingefügt, der den relativen Anteil der Atome angibt, die gerade mit der Wand stoßen, also der Wechselwirkung unterworfen sind:

$$\frac{d\tilde{\mathcal{G}}}{dt} = - \frac{t_s}{t_s + t_v} \int_0^\infty \overline{[Q^*(t), [Q^*(t-\tau), \tilde{\mathcal{G}}(t)]]} d\tau$$

Hierbei ist Q^* der Hamiltonoperator¹⁾ der Störung (Quadrup. Ww.) im Wechselwirkungsbild. Als ungestörter Hamiltonoperator²⁾ wird bei (26) $\mathcal{H}_0 = \omega_f I_z$ (d.h. die Wechselwirkung mit dem statischen Magnetfeld, $\omega = \gamma H$) angenommen.

Bei Verwendung einer Entwicklung des Quadrupolhamiltonoperators nach Kugelflächenfunktionen er-

- - - - -

1) Entsprechend (40) ist entweder der Hamiltonoperator $\hbar Q^*$ oder es muß in (26), Formel 6: $Q^*/\hbar$ stehen. Dort ist jedoch die Vereinbarung $\hbar = 1$ getroffen.

2) wie 1) : $\hbar = 1$

hält man (26) :

$$Q = - \frac{e_0 \cdot q \cdot Q_0}{I(2I-1)} \sqrt{\frac{\pi}{5}} \sum_{r=-2}^{+2} A^r Y_2^{-r}(\vartheta, \varphi)$$

$$\text{mit: } A^0 = 3 \frac{I_z^2}{2} - I(I+1)$$

$$A^{\pm 1} = \frac{\sqrt{6}}{2} [I_z, I_{\pm}]_{+} \quad ([\]_{+} : \text{Antikommutator})$$

$$A^{\pm 2} = \frac{\sqrt{6}}{2} I_{\pm}^2 \quad (I_{\pm} = I_x \pm i I_y)$$

dabei ist: e_0 : Elementarladung

$q = \frac{\partial^2 V}{\partial z'^2}$ Gradient des elektrischen Feldes
in z' -Richtung

Q_0 : Maß für das Quadrupolmoment (Dimension cm^2)

Damit wird:

$$\begin{aligned} Q^*(t) &= e^{i\mathcal{H}_0 t} Q(t) e^{-i\mathcal{H}_0 t} \\ &= - \frac{e_0 \cdot q \cdot Q_0}{I(2I-1)} \sqrt{\frac{\pi}{5}} \sum_r e^{ir\omega_f t} A^r Y_2^{-r}(\vartheta, \varphi) \end{aligned}$$

Das Produkt $\overline{Q^*(t) Q^*(t-\tau)}$ beschreibt die mittlere Korrelation zwischen den Störungen zur Zeit t und zur Zeit $t-\tau$ und verschwindet für Zeiten $\tau \gg \tau_c$: Korrelationszeit der Störung). Bei (26) wird angenommen, daß (wegen der Kürze der Korrelationszeit) gilt:

$$\overline{Q^*(t) Q^*(t-\tau)} = \overline{Q^*(t) Q^*(t)} e^{-\tau/\tau_c}$$

Damit und aus der Orthogonalitätsrelation der Kugelfunktionen ergibt sich unter gewissen Vernachlässigungen (26) für die Bewegungsgleichung der Ausdruck:

$$\frac{d\tilde{\mathcal{Q}}}{dt} = - \frac{1}{36} \sum_r J_r [A^r, [A^{-r}, \tilde{\mathcal{Q}}(t)]]$$

$$\text{mit: } J_r = J_{-r} = \frac{36\pi}{5} \frac{t_s}{(t_s + t_v)} \left\{ \frac{e_0 \cdot q \cdot Q_0}{I(2I-1)} \right\}^2 \frac{\tau_c}{1 + (r\omega_f \tau_c)^2}$$

Die J_r sind Relaxationsraten, wobei die Raten $1/T_1$ als Linearkombinationen der J_r dargestellt werden können. Im Falle der "extremen Einschränkung" ($\omega_f \tau_c \ll 1$) werden

die J_r -alle gleich (26), es gilt dann:

$$(E\ 6) \quad J_r = J = \frac{36\pi}{5} \frac{t_s \cdot \tau_c}{t_s + t_v} \left\{ \frac{e_o \cdot q \cdot Q_o}{I(2I-1)} \right\}^2$$

Für das Alignment von Hg 201 ($I = 3/2$) ergibt sich entsprechend (26), nur ohne die Konvention $\kappa = 1$, im Falle der extremen Einschränkung:

$$(E\ 7) \quad \frac{1}{T_o} = \frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_2} = 4J = \frac{16\pi}{5} \frac{t_s \cdot \tau_c}{t_v} \frac{e_o^2 q^2 Q_o^2}{\kappa^2}$$

($t_s \ll t_v$)

Wie Messungen bei (26) ergeben, gilt im Magnetfeldbereich $H_o \leq 400$ Oe sicher die Bedingung der extremen Einschränkung. Dies konnte auch bei der in Abschnitt E 1 beschriebenen Untersuchung zur Magnetfeldabhängigkeit der Zeitkonstanten T_o bestätigt werden.

Die Formel E 6 wurde unter der Voraussetzung berechnet, daß der Feldgradient auf der Wand zylindersymmetrisch ist. Außerdem ist vorausgesetzt, daß alle Werte ϑ, φ bei der Polarkoordinaten-Beschreibung des Gradienten mit gleicher Wahrscheinlichkeit auftreten. Diese Annahme scheint für die Wandrelaxation in einer würfelförmigen Zelle nicht ganz unproblematisch und wird nur durch die mikroskopische "Gebirgsstruktur" der Wand gerechtfertigt. Im Gas jedoch kann man sicher in guter Näherung eine isotrope Verteilung der Stoßrichtungen annehmen, und Zylindersymmetrie des Feldgradienten ist bei Zweierstößen diamagnetischer Atome ebenfalls gegeben. Somit können die von (26) angestellten Überlegungen auf die Gas-Relaxation übertragen werden, wobei es allerdings bei Stößen im Gas eher als auf der Wand naheliegt, die Korrelationszeit τ_c mit der Verweilzeit im Stoß gleichzusetzen.

E.3.2.3.5. Abschätzung der Konsistenz zwischen den Annahmen über den Relaxationsmechanismus und den Meßergebnissen für Wand- und Gas-Relaxation

Die Formel E 7 kann zu einer Abschätzung des Produktes $q^2 \cdot t_s \cdot \tau_c$ benutzt werden. Wenn man für einen groben Konsistenz - Test der angestellten Überlegungen als Feldgradienten beim Stoß einen Wert annimmt, wie ihn ein Elektron im Abstand ca. $2,5 \text{ \AA}$ erzeugt, erhält man aus den gemessenen Relaxationsraten eine Abschätzung für das Produkt $t_s \cdot \tau_c$. Es gilt dann:

$$(E 8) \frac{1}{T} \approx \frac{\tau_c \cdot t_s}{t_v} \cdot 2 \cdot 10^{15} \text{ sek}^{-2}$$

Es werden für die Abschätzung wieder (wie unter Abschn. E.3.2.3.) Bedingungen gewählt, unter denen Wandrelaxation und Gasrelaxation vergleichbar sind.

1) Wandrelaxation 170° C (extrapoliert auf $n_{\text{Hg}} = 0 \text{ cm}^{-3}$)
Meßergebnis: $1/T^W \approx 0,7 \text{ Hz}$;

mit $t_v \approx 2,3 \cdot 10^{-4} \text{ sek}$ ergibt sich aus E 8 der Wert:

$$t_s^W \cdot \tau_c^W \approx 8 \cdot 10^{-20} \text{ sek}^2$$

Für eine Korrelationszeit von ca. $5 \cdot 10^{-12} \text{ sek}$ würde folgen: $t_s^W \approx 1,6 \cdot 10^{-8} \text{ sek}$, wenn man Korrelationszeit und Verweilzeit als gleich annimmt, ergibt sich für beide $t_s^W \approx 3 \cdot 10^{-10} \text{ sek}$.

Aus der Formel E 5 berechnet man mit $t_0 = 10^{-12} \text{ sek}$ eine Verweilzeit¹⁾ von $3 \cdot 10^{-9} \text{ sek}$, bei der Annahme $t_0 = 5 \cdot 10^{-12} \text{ sek}$ erhält man für die Verweilzeit $t_s^W \approx 1,5 \cdot 10^{-8} \text{ sek}$. Damit ist das Ergebnis der obigen Abschätzung durchaus verträglich.

2) Gasrelaxation: $n_{\text{Hg}} = 8 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, $\Theta_w = 170^\circ \text{ C}$

Meßergebnis: $1/T^{\text{Gas}} \approx 0,7 \text{ Hz}$, daraus erhält man entsprechend Gleichung E 8:

$$\frac{\tau_c^{\text{Gas}} \cdot t_s^{\text{Gas}}}{t_v'} \approx 3,5 \cdot 10^{-16} \text{ sek}.$$

Die Zeit zwischen zwei Gas-Stößen t_v' ist nicht so ein-
- - - - -

1) vergl. Tabelle 6

deutig zu definieren, wie die Flugzeit zwischen zwei Wandstößen. Sie hängt davon ab, was man als "Stoß" betrachtet, bzw. von dem jeweiligen Wirkungsquerschnitt (vergl. S. 89). Es gilt: $t_v' = \lambda' / \bar{c}$. Für $\lambda' = \lambda_{\text{kin}}$ erhält man $t_v' \approx 5,2 \cdot 10^{-6}$ sek und daraus:

$$t_s^{\text{Gas}} \cdot \tau_c^{\text{Gas}} \approx 1,9 \cdot 10^{-21} \text{ sek}^2.$$

Wenn man Korrelationszeit und Stoßzeit als gleich annimmt, ergibt sich also: $t_s^{\text{Gas}} \approx 4,4 \cdot 10^{-11}$ sek.

Für eine Korrelationszeit von ca. $5 \cdot 10^{-12}$ sek würde man $t_s^{\text{Gas}} \approx 3,8 \cdot 10^{-10}$ sek erhalten.

Eine Stoßdauer größer als 10^{-10} sek kann es bei normalen Stößen nur für sehr wenige Atome geben (langsamere "Schwanz" der Maxwellverteilung oder Stöße mit einem (singulären) Stoßparameter, der zur spiraligen Annäherung an eine Kreisbahn führt ("Orbiting" (41))). Dafür, daß eine so große mittlere Stoßzeit möglich würde, müßte man annehmen, daß ein merklicher Anteil der stoßenden Atome als Quasi-Moleküle für längere Zeit, etwa bis zur Zerstörung der Bindung beim nächsten Stoß, gebunden bleibt.

Wenn man eine Reichweite für die Wechselwirkung von $10 \text{ \AA}$ annimmt und statt des gaskinetischen Wirkungsquerschnittes diese Reichweite, bzw. den entsprechenden Wirkungsquerschnitt berücksichtigt, ergibt sich eine größere Stoßrate und man erhält: $t_v' \approx 1,3 \cdot 10^{-6}$ sek und daraus: $t_s^{\text{Gas}} \cdot \tau_c^{\text{Gas}} \approx 4,8 \cdot 10^{-22} \text{ sek}^2$.

Damit schließlich folgt für die Abschätzung der Stoßzeit (Korrelationszeit und Stoßzeit als gleich angenommen) $t_s^{\text{Gas}} \approx 2,2 \cdot 10^{-11}$ sek. Zum Vergleich: dies entspricht der Dauer eines Umlaufes zweier Atome umeinander im Abstand $10 \text{ \AA}$ mit thermischer Geschwindigkeit.

Diese Abschätzungen können keine absolute Aussage über die Gültigkeit der zum Verständnis der Relaxation gemachten Annahmen liefern. Sie zeigen jedoch, daß für die physikalischen Parameter keine unwahrscheinlichen Werte angenommen werden müssen, um inner-

halb des zugrunde gelegten Modells die Größenordnung der beobachteten Relaxationsanteile zu erklären.

E.3.2.3.6. Deutung der Temperaturabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte

Die in Abschnitt E.3.2.3.2. berechneten Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung des Alignments beim Stoß zeigen eine leichte Abhängigkeit von der Gastemperatur ($\Theta_{\text{Gas}} = \Theta_{\text{W}}$ angenommen).

Diese Abhängigkeit läßt sich innerhalb des betrachteten einfachen Stoß-Modells zumindest teilweise erklären. Durch Einsetzen von $t_{\text{V}}' = \bar{c}/\lambda' = \sqrt{2} n_{\text{Hg}} \cdot \bar{c} \cdot \sigma_{\text{ww}} = v_{\text{rel}} \cdot n_{\text{Hg}} \cdot \sigma_{\text{ww}}$ in die Gleichung E 7 ergibt sich:

$$(E\ 9) \quad \frac{1}{T} \sim n_{\text{Hg}} \cdot v_{\text{rel}} \cdot \sigma_{\text{ww}} \cdot t_{\text{s}}^{\text{Gas}} \cdot \tau_{\text{c}}^{\text{Gas}} \cdot \underbrace{\left\{ \frac{e_0 \cdot q \cdot Q_0}{\hbar} \right\}^2}_{= A^2}$$

Beim Vergleich von E 9 mit der Definition der Wirkungsquerschnitte (vergl. E.3.2.3.2.):

$$\frac{1}{T_i} = n_{\text{Hg}} \cdot v_{\text{rel}} \cdot \sigma_i \quad ; \quad i = 0, 1, 2$$

erhält man: $\sigma_i \sim \sigma_{\text{ww}} \cdot t_{\text{s}}^{\text{Gas}} \cdot \tau_{\text{c}}^{\text{Gas}} \cdot A^2$ bzw. unter der Annahme, daß bei Stößen im Gas $\tau_{\text{c}}^{\text{Gas}} = t_{\text{s}}^{\text{Gas}}$ ist:

$$\sigma_i \sim (t_{\text{s}}^{\text{Gas}})^2 \cdot A^2 \cdot \sigma_{\text{ww}} .$$

Entsprechend dem Ansatz $t_{\text{s}}^{\text{Gas}} \approx 15 \text{ \AA} / \bar{c}$ gilt daher für die Wirkungsquerschnitte:

$$\sigma_i \sim \frac{1}{\bar{c}^2} \sim \frac{1}{\Theta_{\text{W}}}$$

In Abbildung 48 sind die drei Wirkungsquerschnitte halblogarithmisch gegenüber $1/\Theta_{\text{W}}$ aufgetragen. Dabei sind jeweils die Werte $\sigma_i \cdot \Theta_{\text{W}} / 273 \text{ } ^\circ\text{K}$ ($i = 0, 1, 2$) mit eingezeichnet. Die so korrigierten Wirkungsquerschnitte zeigen nur noch eine sehr schwache Abhängigkeit von der Temperatur.

Die verbleibende Temperaturabhängigkeit kann nur bei wesentlicher Verfeinerung des Modells quantitativ

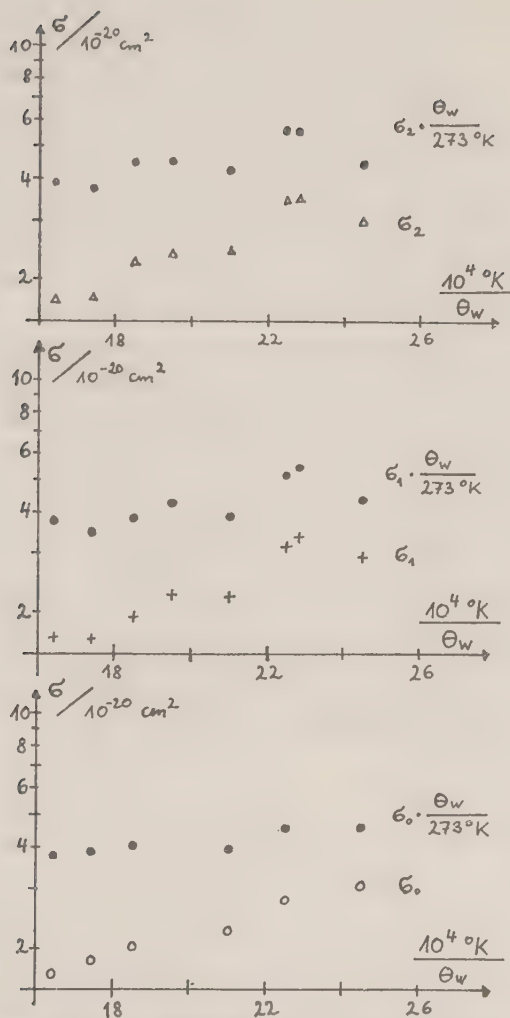


Abb. 48 :

Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit von der Wandtemperatur (= Gastemperatur): als volle Punkte sind die mit $\Theta_w/273 \text{ } ^\circ\text{K}$ entsprechend den angegebenen Überlegungen korrigierten Werte eingezeichnet

erklärt werden. Qualitativ ist jedoch eine Interpretation möglich.

Für die Stoßzeit wurde angenommen: $t_s^{\text{Gas}} \approx 15 \text{ Å}/\bar{c}$.
Bei genauerer Betrachtung der Stoßprozesse sieht man ein, daß der mittlere innerhalb des Wechselwirkungsbereiches zurückgelegte Weg nicht unabhängig von der mittleren kinetischen Energie der Atome sein kann. Das abstoßende Zentrifugalpotential (vergl. Fußnote auf S. 87) beim nicht-zentralen Stoß zweier Atome ist bei festem Stoßparameter S proportional zur Relativenergie¹⁾. Daher liegt für nicht-zentrale Stöße mit gleichem Stoßparameter der innere Umkehrpunkt der Bahn bei hoher Relativenergie weiter außen (d.h. bei größerem Kernabstand) als bei kleiner Relativenergie. Im Mittel über alle Atome führt daher eine Temperaturerhöhung zu einer zusätzlichen Verkürzung der mittleren Verweilzeit im Wechselwirkungsbereich (vergleiche (42)).

Eine quantitative Aussage, wie stark der Einfluß dieses Effektes sein kann, ist nur durch detaillierte Rechnung zu gewinnen. Da genaue Daten über den Verlauf des Wechselwirkungspotentials (van der Waals Ww.) beim Stoß von Quecksilberatomen im Grundzustand nicht vorliegen, soll auch nicht der Versuch unternommen werden, dieses Problem quantitativ zu untersuchen.

$$1) \quad v_{\text{zentr}} = \frac{L_z^2}{2\mu r^2} \sim \frac{S^2 E_{\text{rel}}}{r^2}$$

$$\mu = m_1 \cdot m_2 / (m_1 + m_2)$$

S : Stoßparameter
 $E_{\text{rel}} = (\mu/2) v_{\text{rel}}^2$
 Relativenergie

F. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden verschiedene Einflüsse auf die Relaxation des Alignments im Grundzustand von Hg 201 untersucht, wobei nicht das reine Isotop Hg 201 als Füllung der Streuzelle verwandt wird, sondern eine Mischung aus dem geraden Isotop Hg 202 als "Puffergas" mit einem Anteil von nur etwa 1% Hg 201 (das ermöglicht es, bei Raumtemperatur ohne Kühlung eines Quecksilberreservoirs optimale "Pumpsignale" zu erhalten).

Im einzelnen wird folgendes festgestellt:

Die Relaxation ist bis zu einer Feldstärke von ca. 400 $\varnothing$ e unabhängig vom statischen Magnetfeld, wobei jedoch die transversalen Zeitkonstanten durch Feldinhomogenitäten erheblich beeinflusst werden. Dieser Einfluß kann (vergl. Anh. 1) innerhalb eines einfachen Modells verstanden und auch in guter Näherung quantitativ erfaßt werden.

Aus der Abhängigkeit der Relaxation von der Wandtemperatur des Streugefäßes (E. 2.) wird die Adsorptionsenergie für Quecksilberatome auf der Wand gewonnen. Der gefundene Wert ($E_B \approx 0,245$ eV) ist in guter Übereinstimmung mit Messungen von Cagnac und Bonnot (22).

Für alle drei Relaxationsraten wird eine lineare Abhängigkeit von der Gesamt-Teilchendichte des Quecksilbers gefunden, die durch den Einfluß von Stößen mit dem "Puffergas" Hg 202 erklärt werden kann. Der "Dichte"-Anteil der Relaxation wird bei einer Teilchendichte von ca. 10^{15} cm^{-3} vergleichbar mit der Wandrelaxation bei hoher Wandtemperatur ($\varnothing_w > 160^\circ \text{C}$).

Die Annahme, daß als Relaxationsmechanismus bei Stößen im Gas die Wechselwirkung des Quadrupolmoments von Hg 201 mit dem beim Stoß erzeugten

elektrischen Feldgradienten zum Tragen kommt, kann durch Abschätzungen über die Größenordnung des Effektes und durch Vergleich mit der Wandrelaxation erhärtet werden (s. E.3.2.3.5.).

Die aus der Dichteabhängigkeit der Relaxation bestimmten Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Alignment-Tensorkomponenten $S_{2,x}^{(a)}$ sind von der Größenordnung $1,5 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ bis $3 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$ ($\Theta_w \geq 135^\circ \text{C}$).

Ihre Temperaturabhängigkeit kann innerhalb des angenommenen Stoß-Modells in befriedigender Weise erklärt werden (E.3.2.3.6.).

Als interessante Fragestellung erscheint in Anbetracht der Meßergebnisse und der Überlegungen in Abschnitt E3.2.3.3. die Untersuchung der Relaxation für die Orientierung (Polarisation) im Grundzustand von Hg 201 in Abhängigkeit von der Teilchendichte und entsprechende Messungen am Isotop Hg 199.

Diese Untersuchungen sollten eine Entscheidung ermöglichen, ob die Annahme über den Relaxationsprozess beim Stoß von Hg 201 mit Hg 202 richtig ist.

In diesem Zusammenhang erhebt sich auch die Frage nach einem möglichen Orientierungs-Austausch zwischen Hg 201 und Hg 199, die bei Verwendung einer mit beiden Isotopen gefüllten Zelle untersucht werden könnte.

Anhang 1

Zur Magnetfeldabhängigkeit der Relaxation:

Einflüsse statischer Inhomogenitäten

Die Zeitkonstante T_0 ist im untersuchten Bereich vom statischen Magnetfeld H_0 nicht abhängig. Dagegen zeigen die Messungen (siehe Abbildungen 10, 26) eine sehr deutliche Verkürzung der Relaxationszeiten T_1 und T_2 mit wachsendem H_0 .

Diese Beobachtung läßt sich unter der Annahme einer von H_0 abhängigen Inhomogenität des Magnetfeldes als Phasenstörung bei der kollektiven Präzession der Atomkerne um H_0 deuten. Dabei sei der Einfluß fluktuierender magnetischer Felder (27) mit einem Power-Spektrum, das bei der Frequenz ν_0 von "Null" verschieden ist, als vernachlässigbar vorausgesetzt¹⁾.

Für eine grobe Abschätzung des Effektes seien einige vereinfachende Annahmen gemacht:

Es soll nur eine Inhomogenität (dH_1) in z-Richtung (H_0 -Richtung) betrachtet werden. Der Mittelwert des Feldes in der Zelle ist H_0 , die Inhomogenität (dH_1) soll nur die beiden Werte $+dH$ und $-dH$ annehmen (siehe Skizze in Abbildung I).

Die Flugzeit von Wand zu Wand ist in einer Zelle der Kantenlänge d für ein Atom τ , die mittlere Flugzeit ist $\bar{\tau} = d/\bar{c}$ ($\bar{c}$: mittlere thermische Geschwindigkeit).

Dann ist τ ein Maß für die "Frequenz" des Wechsels zwischen den Feldwerten $H_0 + dH$ und $H_0 - dH$.

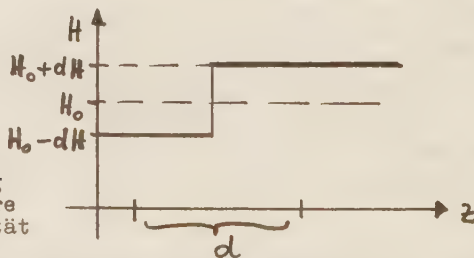
Es wird angenommen, daß ein Atom während Perioden der

1) Solche fluktuierenden Felder könnten Übergänge zwischen den Zeeman-Zuständen des Grundzustands induzieren und damit die Relaxation beschleunigen. Wie man an den Bewegungsgleichungen für die S_{2x} (A 4) sieht, werden durch ein Wechselfeld die S_{2x} untereinander verknüpft. Eine Änderung von z.B. τ_1 würde daher nicht nur das Zeitverhalten von $S_{2,1}$, sondern auch das der anderen Komponenten beeinflussen.

statistisch fluktuierenden Länge z jeweils einem konstanten Feld $H_0 + dH$ oder $H_0 - dH$ ausgesetzt ist. Da die einzelnen Atome den Mittelungsprozeß über viele Perioden nicht völlig identisch ausführen, ergibt sich in endlicher Zeit für die Präzession der Kerne um die Richtung des statischen Magnetfeldes eine von Atom zu Atom variierende Phasenabweichung gegenüber dem Präzessionswinkel für streng homogenes Feld. Ist anfänglich eine mittlere Ausrichtung der Kerne entlang einer Achse, die nicht parallel zu H_0 ist, gegeben (transversale Ausrichtung), so präzediert diese um die Richtung von H_0 und die verschiedenen Phasenabweichungen $d\alpha_i(t)$ der einzelnen Atome gegenüber $\alpha_0(t) = \omega_0 \cdot t$ führen schließlich zu einer Verteilung der Atomkerne, die bezüglich der Ebene senkrecht zu H_0 isotrop ist. Dies führt zu einem Abbau des transversalen Anteiles der Ausrichtung (senkrecht zu H_0), der durch $S_{2,1}^{(a)}$ und $S_{2,2}^{(a)}$ beschrieben wird und somit zu einer Änderung der "transversalen Zeitkonstanten" T_1 und T_2 . Der longitudinale (parallel zu H_0) Anteil der Ausrichtung - beschrieben durch $S_{2,0}^{(a)}$ - wird dadurch nicht verändert, d.h. T_0 bleibt unbeeinflusst.

Abb. I

"Stufen"-Näherung
für eine lineare
Feldinhomogenität



Der Einfluß der Inhomogenität auf die Relaxationszeitkonstanten kann anhand des Differentialgleichungssystems A 4 für $\omega_1 = 0$ diskutiert werden. Die Tensorkomponente $S_{2,0}^{(a)}$ ist ohne magnetisches Wechselfeld unabhängig von H_0 .

Für die Komponenten $g_{2,1}^{(a)}, g_{2,2}^{(a)}$ ($\lambda = -1, -2$ analog) gilt für $\omega_1 = 0$ entsprechend den Gleichungen A 5 :

$$g_{2,\lambda}^{(a)}(t) = g_{2,\lambda}^{(a)}(0) e^{i\lambda\omega_0 t} e^{-\frac{t}{T_2}} \quad (\omega_0 = \gamma H_0)$$

Im inhomogenen Feld (Inhomogenität: dH_{inh}) ist die Larmor-Frequenz $\omega = \omega_0 + d\omega_{inh}$ ($d\omega_{inh} = \gamma dH_{inh}$), also:

$$g_{2,\lambda}^{(a)}(t) = g_{2,\lambda}^{(a)}(0) e^{i\lambda(\omega_0 + d\omega_{inh})t} e^{-\frac{t}{T_2}}$$

Die zeitliche Entwicklung ("Präzession") der Tensor-komponenten geschieht im homogenen Magnetfeld mit der Frequenz $\lambda\omega_0$, im inhomogenen Feld jeweils lokal mit der Frequenz $\lambda\omega = \lambda(\omega_0 \pm d\omega_{inh})$, ($\lambda = 1, 2$). Während der Zeit τ tritt im inhomogenen Feld gegenüber der zeitlichen Entwicklung im homogenen Feld ($\omega = \omega_0$) eine Phasenabweichung $d\alpha = \pm \tau d\omega_{inh}$ auf. Bei statistisch fluktuierenden Werten von τ , d.h. der Aufenthaltsdauer in Bereichen der Inhomogenität $+dH_{inh}$ bzw. $-dH_{inh}$, kann über längere Zeiten $t = n\bar{\tau} \gg \tau$ keine zeitliche Phasenabweichung mehr vorausgesagt werden. Es ist nur noch möglich, einen Erwartungswert für das Quadrat der Abweichung anzugeben. In Analogie zur Diffusion erhält man nach n Perioden $\bar{\tau}$ eine mittlere quadratische Phasenabweichung (28):

$$\langle \alpha_{inh}^2 \rangle = n \langle (d\alpha)^2 \rangle = n \cdot \bar{\tau}^2 \lambda^2 \langle (d\omega_{inh})^2 \rangle$$

Ein Maß für das Auseinanderlaufen der Phasen ist die Zeit, in der die Phasenabweichung 1 Radian erreicht wird ($\langle \alpha_{inh}^2 \rangle = 1$). Dafür sind n_{inh} Fluktuationsperioden notwendig.

$$n_{inh} \bar{\tau}^2 \lambda^2 \langle d\omega_{inh}^2 \rangle = 1$$

Die Zeitdauer bis zum Erreichen dieser Abweichung (t_R) ist ein Maß für den Inhomogenitätsanteil der

Relaxation. Es gilt: $t_R = n_{inh} \bar{\tau}$, also:

$$t_R = \frac{1}{x^2 \bar{\tau} \langle d\omega_{inh}^2 \rangle} \sim T_{inh}^x$$

Damit gilt für die Inhomogenitätsanteile der Relaxationsraten:

$$1/T_x^{inh} \sim x^2 \langle d\omega_{inh}^2 \rangle \bar{\tau}$$

Als Fluktuationsperiode $\bar{\tau}$ wird man bei nicht zu hoher Dichte in der Zelle die mittlere Flugzeit für eine Strecke der Länge $l \approx d$ (Kantenlänge der Zelle) ansetzen: $\bar{\tau} = d/\bar{c}$ ($\bar{c}$: mittlere thermische Geschwindigkeit). Bei sehr hoher Teilchendichte im Streugefäß (sehr kleiner freier Weglänge μ) ist das nicht mehr vernünftig. Die Fluktuationsperiode wird dann eher durch eine Diffusionszeit zu beschreiben sein, d.h. z.B. durch die Zeit, in der das mittlere Verschiebungsquadrat ($\langle x^2 \rangle$) einen Wert $\langle x^2 \rangle \approx d^2$ annimmt. Da $\langle x^2 \rangle \sim \bar{c} \cdot \mu \cdot \tau_{Diff}$ ist, folgt also:

$$\tau_{Diff} \sim \frac{d^2}{\bar{c} \cdot \mu} \sim \frac{d^2 \cdot n}{\bar{c}} \quad (n: \text{Teilchendichte})$$

Näherungsweise müßte man also für die Fluktuationsperiode τ den allgemeinen Ansatz wählen:

$$\tau \sim \frac{d}{\bar{c}} (1 + \text{const.} \cdot n)$$

Wie man jedoch aus einem Vergleich der Dichteabhängigkeit der Relaxationsrate $1/T_0$ mit den Raten $1/T_1$ und $1/T_2$ sieht, kann eine Dichteabhängigkeit des Inhomogenitätsanteils der Relaxation für die Raten $1/T_1$ und $1/T_2$ keine große Rolle spielen. Eine solche Abhängigkeit wurde daher vernachlässigt.

Für die Auswertung der Messungen wurde ein Inhomogenitätsanteil der Relaxationsraten angenommen:

$$(A1. 1) \quad 1/T_x^{inh} = x^2 \langle d\omega_{inh}^2 \rangle \frac{d}{\bar{c}}$$

$$1/T_x^{inh} = x^2 \gamma^2 \langle dH_{inh}^2 \rangle \frac{d}{\bar{c}}$$

Ein Proportionalitätsfaktor wird durch diese Fest-

legung der Einfachheit halber dem Inhomogenitätsanteil (dH_{inh}) des Magnetfeldes zugeschlagen. Die durch einen Fit von Messungen der Feldabhängigkeit der Relaxationsraten $1/T_1$ und $1/T_2$ mit der obigen Formel gewonnenen Werte für $\langle dH_{inh}^2 \rangle$ können sich aus diesem Grund etwas von direkt gemessenen Werten der Inhomogenität unterscheiden. (Etwas realistischere Werte für $\langle dH_{inh}^2 \rangle$ ergeben sich, wenn man annimmt, daß die Näherungsformel für den Inhomogenitätsanteil die Halbwertszeit angibt. Für die $1/e$ - tel Relaxationsrate wäre dann ein Proportionalitätsfaktor $1/\ln 2$ anzusetzen).

Wegen des Faktors κ^2 in Formel A1.1 gilt für das Verhältnis der Raten :

$$1/T_2^{inh} : 1/T_1^{inh} = 4$$

Das entspricht genau dem experimentellen Befund.

Anhang 2

Winkel- und Polarisationsabhängigkeit der Streulicht- und Tastlichtsignale

Die folgenden Betrachtungen sind einer Arbeit entnommen, die in Kürze veröffentlicht wird (17). Dort werden die Streulicht- und Tastlichtsignale beim optischen Pumpen für beliebige Geometrie und Polarisation im Irreduzibel-Tensor-Formalismus berechnet.¹⁾

Zur Festlegung der Beziehungen zwischen den im Experiment beobachteten Signalgrößen und den Tensorkomponenten $\mathcal{G}_{2,\mathbf{x}}^{(a)}$ werden die im Detektor (Photomultiplier) nachgewiesenen Photonen-Raten betrachtet. Die Polarisationsempfindlichkeit des Detektors (bzw. vorgeschalteten Polarisators) wird durch einen Polarisations-Operator $\Pi(\mathcal{E})$ beschrieben, die Polarisationsstruktur des Tastlichtes durch den Operator $\Pi(\mathcal{E}')$.

(Für Photonen der Ausbreitungsrichtung $\vec{e} = \vec{k}/|\vec{k}|$ ($\vec{k}$: Wellenvektor) ist der Polarisationsoperator der Projektor auf den (einquantig besetzten) Feldzustand des optischen Strahlungsfeldes $|k, \mathcal{E}\rangle$, der durch die Ausbreitungsrichtung $\vec{k}/|\vec{k}|$ und den Polarisationszustand $\mathcal{E}$ charakterisiert ist ($\mathcal{E} = \sigma, \varphi$ für zirkulare bzw. lineare Polarisation).)

1) Emission

Die Emissionsrate für spontane Emission von Photonen der Ausbreitungsrichtung $\vec{e} = \vec{k}/|\vec{k}|$ mit der Polarisation $\mathcal{E}$ ist gegeben durch (17), (11):

$$(A\ 2.I) \quad \langle \dot{n}_{\mathcal{E}} \rangle_{em} \sim \frac{N \cdot P_b}{T_s} \text{tr} (\mathcal{G}(s) \cdot \Pi(\mathcal{E}))$$

mit: N : Zahl der Atome im Beobachtungsvolumen
 P_b : Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes (b)
 T_s : Mittlere Lebensdauer des angeregten Zustands
 $\mathcal{G}(s)$: Statistischer Operator, der die (spontane) Emission von elektr. Dipolstrahlung beschreibt

1) Bezüglich der Streulichtsignale bei der speziellen hier gegebenen Geometrie ($\angle 90^\circ$ zwischen Pumplicht- und Beobachtungsrichtung, Pumplicht parallel zu H_0 ("longitudinales" optisches Pumpen)). sei auch auf (11) verwiesen.

$\mathcal{G}(s)$ kann nach irreduziblen Tensoroperatoren entwickelt und zum statistischen Operator $\mathcal{G}(b)$ (statistischer Operator für die Atome im angeregten Zustand) in Beziehung gebracht werden (17), (11).

Für die Komponenten der Tensorentwicklung gilt:

$$\mathcal{G}_{K,x}^{(s)} = c_K(b,a) \cdot \mathcal{G}_{K,x}^{(b)} \quad \text{mit:}$$

$$c_K(b,a) = (-1)^{a+b+1+K} \hat{b}^2 \begin{Bmatrix} K & 1 & 1 \\ a & b & b \end{Bmatrix}$$

$$\hat{b} = \sqrt{2b+1}$$

Dabei stehen a und b für die Gesamtdrehimpuls-Quantenzahl des Grundzustands (a) bzw. des angeregten Zustands (b). Beim optischen Pumpen von Hg 201 über den 3P_1 $F = 3/2$ Zustand gilt: $a = b = 3/2$.

2) Absorption

Die Absorption im Gas schwächt das mit der Nachweispolarisation $\mathcal{E}$ beobachtete Tastlicht (Eingangspolarisation $\mathcal{E}'$). Die Absorptionsrate ist gegeben durch (17):

$$(A \ 2.II) \quad \langle \dot{n}_{\text{abs}} \rangle \sim - N P_a \left\{ \frac{1}{2T_p'} \cdot \text{tr} \left(\mathcal{G}(A) \cdot [\pi'(\mathcal{E}'), \pi(\mathcal{E})]_+ \right) - \frac{i}{\hbar} \Delta E_p' \cdot \text{tr} \left(\mathcal{G}(A) \cdot [\pi'(\mathcal{E}'), \pi(\mathcal{E})]_- \right) \right\}$$

mit: P_a : Besetzungswahrscheinlichkeit des Grundzustandes (bei thermischen Lichtquellen $P_a \approx 1$)

$\mathcal{G}(A)$: Statistischer Operator für Absorption von elektrischer Dipolstrahlung

T_p' : Tastlicht-Pumpzeitkonstante

$\Delta E_p'$: Grundzustands-Energieverschiebung durch den Taststrahl

Bei den gegebenen experimentellen Bedingungen (Linear-Polarisation im Tastlicht, unpolarisierte Beobachtung) sind $\pi'(\mathcal{E}')$ und $\pi(\mathcal{E})$ vertauschbar.

$$(\pi'(\mathcal{E}') \cdot \pi(\mathcal{E}) = \pi'(\mathcal{E}') \cdot \mathbb{1} = \pi'(\mathcal{E}'))$$

Damit verschwindet der $(-)$ -Kommutator und es verbleibt:

$$\langle \dot{n}_{\text{abs}} \rangle = - \frac{N}{T_p} \cdot \text{tr} (g(A) \cdot \pi'(\epsilon)) \quad (P_a=1)$$

Entsprechendes gilt für Übereinstimmung von Tastlicht- und Nachweispolarisation $(\pi'(\epsilon)\pi(\epsilon) = \pi^2(\epsilon) = \pi(\epsilon))$, oder für unpolarisiertes Tastlicht und beliebige Nachweispolarisation $(\pi'(\epsilon)\pi(\epsilon) = \mathbb{1}\pi(\epsilon) = \pi(\epsilon))$.

$g(A)$ läßt sich wieder (analog zu $g(s)$) nach irreduziblen Tensoroperatoren entwickeln und zum statistischen Operator $g(a)$ für die Atome im Grundzustand in Beziehung setzen. Für die Komponenten der Tensorentwicklung gilt: $g_{K,\lambda}^{(A)} = c_{K,\lambda}(a,b) g_{K,\lambda}^{(a)}$ mit:

$$c_{K,\lambda}(a,b) = (-1)^{a+b+1} \hat{a}^2 \begin{Bmatrix} 1 & 1 & K \\ a & a & b \end{Bmatrix}$$

3) Die Signalfunktion

Das beobachtete Streulicht ist proportional zu der Emissionsrate (A 2.I). Die beim Taststrahlverfahren nachgewiesenen Photonen sind jedoch gerade die nicht absorbierten Photonen. Das Tastlichtsignal ist also proportional zur "Transmissionsrate":

$$\begin{aligned} \langle \dot{n}_{\text{Transm.}} \rangle &= \langle \dot{n}_{\text{Eingang}} \rangle + \langle \dot{n}_{\text{abs}} \rangle \\ &= \frac{\text{Const.}}{T_p} - \frac{N}{T_p} \cdot \text{tr} (g(A) \cdot \pi'(\epsilon)) \end{aligned}$$

Die beobachteten Signale sind also:

$$(A \ 2.III) \quad S_{\text{em}} \sim \frac{NP_b}{T_s} \cdot \text{tr} (g(s) \cdot \pi(\epsilon)) \quad (\text{Streulicht})$$

$$(A \ 2.IV) \quad S_{\text{tran}} \sim \frac{1}{T_p} \left\{ C - N \cdot \text{tr} (g(A) \pi'(\epsilon)) \right\} \quad (\text{Tastlicht})$$

Dabei ist die eigentliche Signalinformation in dem Term: $\text{tr} (g \cdot \pi)$ enthalten, der formal für beide Signale gleich ist. Die in diesem Term ebenfalls enthaltene Geometrie-(Winkel-)Abhängigkeit und Polari-

sationsabhängigkeit kann daher für beide Fälle durch die Betrachtung der allgemeinen Signalfunktion

$\rho^I = \text{tr}(\mathcal{G} \cdot \Pi)$ untersucht werden.

Der Polarisationsoperator $\Pi(\mathcal{E})$ (bzw. $\Pi'(\mathcal{E}')$) läßt sich nach irreduziblen Tensoroperatoren entwickeln. Bei Verwendung der Tensorentwicklung für $\mathcal{G}(A)$ bzw. $\mathcal{G}(s)$ ergibt sich dann für die allgemeine Signalfunktion

$$(A\ 2.V) \quad \rho^I = \text{tr}(\mathcal{G} \cdot \Pi) = \sum_{K, \mathbf{x}} C_K \mathcal{G}_{K, \mathbf{x}}^* \Pi_{K, \mathbf{x}}$$

Für Streulichtbeobachtung ist:

$$(A\ 2.VI) \quad \rho^I = \sum_{K, \mathbf{x}} C_K(b, a) \mathcal{G}_{K, \mathbf{x}}^{*(b)} \Pi_{K, \mathbf{x}}(\mathcal{E})$$

Für Tastlichtbeobachtung:

$$(A\ 2.VII) \quad \rho^I = \sum_{K, \mathbf{x}} C_K(a, b) \mathcal{G}_{K, \mathbf{x}}^{*(a)} \Pi'_{K, \mathbf{x}}(\mathcal{E}')$$

Für die Beschreibung bietet sich die Wahl zweier ausgezeichneten Koordinatensysteme Σ und Σ' an. Das System Σ ("Atomsystem") ist so gewählt, daß seine z-Achse mit der Pumplichtrichtung und der Richtung des statischen Magnetfeldes übereinstimmt. Die z'-Achse des Systems Σ' (Nachweissystem) fällt mit der Richtung des Tastlichtes $\vec{e} = \vec{k}/|\vec{k}|$ (bzw. der Beobachtungsrichtung) zusammen (s. Abbildung II). Die statistischen Operatoren $\mathcal{G}(s)$ und $\mathcal{G}(A)$ sind auf das System Σ bezogen, dessen z-Achse Quantisierungsachse für die ausgerichteten Atome ist. Die Tastlicht- bzw. Nachweispolarisierung läßt sich im System Σ' im allgemeinen einfacher beschreiben, vor allem aber ist die Darstellung in Σ' unabhängig von der jeweiligen Wahl des Winkels zwischen Pumplicht und Tastlicht (Beobachtungsrichtung). Die Darstellung des Polarisationsoperators bezüglich des Systems Σ' (z'-Achse: $\vec{e} = \vec{k}/|\vec{k}|$) wird mit $\Pi^e(\mathcal{E})$ bezeichnet.

Im Fall $\mathcal{E} = \mathcal{V}$ (Linearpolarisation, Winkelstellung des Polarisators: $\mathcal{V}$) gilt für die nicht verschwindenden Komponenten der Tensorentwicklung von $\pi^e(\mathcal{E})$:

$$(A\ 2.VIII) \quad \pi_{0,0}^e(\mathcal{V}) = \frac{1}{\sqrt{3}} \quad (17)$$

$$\pi_{2,0}^e(\mathcal{V}) = \frac{1}{\sqrt{6}} \quad \text{mit: } \pi_{K,\mathcal{X}}^e(\mathcal{V}) = (-1)^{\mathcal{X}} \pi_{K,\mathcal{X}}^{e*}(\mathcal{V})$$

$$\pi_{2,\pm 2}^e(\mathcal{V}) = -\frac{1}{2} \exp(\pm 2i\varphi)$$

Zur Berechnung der allgemeinen Signalfunktion $\mathcal{S}$ benötigt man jedoch nicht die $\pi_{K,\mathcal{X}}^e(\mathcal{V})$, sondern die auf das System Σ bezogenen Tensorkomponenten $\pi_{K,\mathcal{X}}(\mathcal{V})$.

Die Drehung (Operator: $\mathcal{D}(\alpha, \beta, \gamma)$)¹⁾ um die Euler'schen Winkel α, β, γ führt das System Σ in Σ' über. Für die Tensorkomponenten $\pi_{K,\mathcal{X}}(\mathcal{V})$ gilt dann (17)²⁾:

$$\pi_{K,\mathcal{X}}(\mathcal{V}) = \sum_{\mathcal{X}'} \pi_{K,\mathcal{X}'}^e(\mathcal{V}) \mathcal{D}_{\mathcal{X},\mathcal{X}'}^{*(K)}(\alpha, \beta, \gamma)$$

$$\text{mit: } \mathcal{D}_{\mathcal{X},\mathcal{X}'}^{*(K)}(\alpha, \beta, \gamma) = \exp(i\mathcal{X}'\alpha) \mathcal{d}_{\mathcal{X},\mathcal{X}'}^{(K)}(\beta) \exp(i\mathcal{X}\gamma)$$

Die Matrixelemente $\mathcal{d}_{\mathcal{X},\mathcal{X}'}^{(K)}(\beta)$ ³⁾ können z.B. nach einer von Wigner angegebenen Formel ((29) p. 52 (4.13)) berechnet werden.

Damit ergibt sich für die nicht verschwindenden Tensorkomponenten im System Σ :

$$\begin{aligned} \pi_{0,0} = \frac{1}{\sqrt{3}}; \quad \pi_{2,\mathcal{X}}(\mathcal{V}) = \exp(i\mathcal{X}\alpha) \left\{ \frac{1}{\sqrt{6}} \mathcal{d}_{\mathcal{X},0}^{(2)}(\beta) - \right. \\ \left. - \frac{1}{2} (\exp(2i(\gamma+\varphi)) \mathcal{d}_{\mathcal{X},2}^{(2)}(\beta) + \exp(-2i(\gamma+\varphi)) \mathcal{d}_{\mathcal{X},-2}^{(2)}(\beta)) \right\} \\ \text{--- -- -- -- --} \quad (\mathcal{X} = 0, \pm 1, \pm 2) \end{aligned}$$

$$1) \mathcal{D} = \exp(-i\alpha J_z) \exp(-i\beta J_y) \exp(-i\gamma J_z) \quad (29)$$

2) Dies folgt aus den Transformationseigenschaften der irreduziblen Tensoroperatoren $U_{K,\mathcal{X}} (\pi = \sum_{K,\mathcal{X}} \pi_{K,\mathcal{X}} \cdot U_{K,\mathcal{X}}^+)$ unter Raumdrehungen (vgl. (29), p. 77 (5.1)).

$$3) \mathcal{d}_{\mathcal{X}',\mathcal{X}}^{(K)}(\beta) = \langle K, \mathcal{X}' | \exp(-i\beta J_y) | K, \mathcal{X} \rangle,$$

$$\mathcal{d}_{\mathcal{X},\mathcal{X}'}^{(K)}(\beta) = (-1)^{\mathcal{X}-\mathcal{X}'} \mathcal{d}_{\mathcal{X}',\mathcal{X}}^{(K)}(\beta) \quad \dots (29)$$

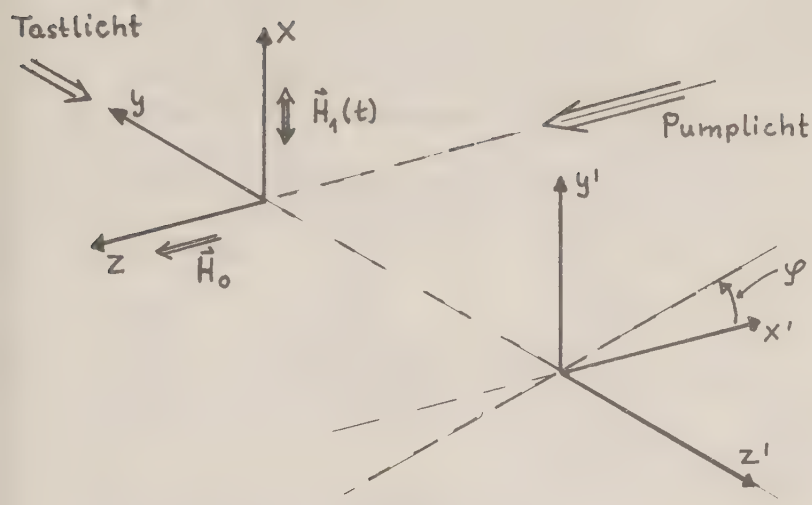


Abb. II

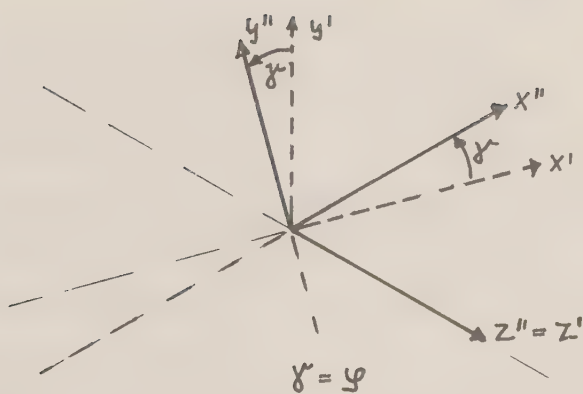


Abb. III

Der Winkel φ , der die Lage der Polarisationssebene angibt, erscheint als zusätzliche Drehung um die z' -Achse (Richtung des Tastlichtes bzw. Beobachtungsrichtung) und kann durch eine Änderung von γ berücksichtigt werden. (s. Abb. III)

Es läßt sich also auch bei der Vereinbarung $\varphi = 0$ eine beliebige Polarisatorstellung beschreiben.

Mit: $S_{2,x}^* = (-1)^x S_{2,-x}$

und: $\pi_{2,x}^* = (-1)^x \pi_{2,-x}$

ergibt sich für die allgemeine Signalfunktion S :

$$S = c_0 S_{0,0} \pi_{0,0} + c_2 \{ S_{2,0} \pi_{2,0} + S_{2,1}^* \pi_{2,1} + S_{2,1} \pi_{2,1}^* + S_{2,2}^* \pi_{2,2} + S_{2,2} \pi_{2,2}^* \}$$

(die Signalfunktion ist reell)

Unter Verwendung der Zerlegung $S_{K,x} = u_{K,x} + i v_{K,x}$
($v_{K,0} \equiv 0$)

nimmt die Signalfunktion nach Einsetzen der $\pi_{K,x}$ und der $d_{x,x',\beta}^{(K)}$ die Form an:

$$\begin{aligned} &= \frac{c_0}{\sqrt{5}} u_{0,0} \\ &+ c_2 \left\{ \frac{1}{\sqrt{6}} (1 - 3 \sin^2 \beta \cos^2 \gamma) u_{2,0} - \right. \\ &\quad - (\cos \alpha \sin^2 \beta \cos^2 \gamma - \sin \alpha \sin \beta \sin 2\gamma) u_{2,1} - \\ &\quad - (\sin \alpha \sin^2 \beta \cos^2 \gamma + \cos \alpha \sin \beta \sin 2\gamma) v_{2,1} + \\ &\quad + (\cos 2\alpha \{1 - (1 + \cos^2 \beta) \cos^2 \gamma\} + \sin 2\alpha \cos \beta \sin 2\gamma) u_{2,2} + \\ &\quad \left. + (\sin 2\alpha \{1 - (1 + \cos^2 \beta) \cos^2 \gamma\} - \cos 2\alpha \cos \beta \sin 2\gamma) v_{2,2} \right\} \end{aligned}$$

Diese Form der Signalfunktion gilt für die Fälle:

- 1) linearpolarisiertes Tastlicht, unpolarisierter Nachweis
- 2) unpolarisiertes Tastlicht, linearpolarisierter Nachweis
- 3) linearpolarisiertes Tastlicht, linearpolarisierter Nachweis bei gleicher Winkelstellung der Polarisatoren
- 4) linearpolarisierte Streulichtbeobachtung

Die C_K sind die Vektorkopplungskoeffizienten $C_K(b,a)$ (Streulicht) bzw. $C_K(a,b)$ (Tastlicht).

Da $a \neq b = 3/2$, gilt : $C_0(b,a) = C_0(a,b)$
 $C_1(b,a) = -C_1(a,b)$
 $C_2(b,a) = C_2(a,b)$.

Bei Linearpolarisation können keine Tensorkomponenten vom Tensorgrad $K = 1$ beobachtet werden, damit müssen die auftretenden Kopplungskoeffizienten für Streulicht- oder Tastlichtbeobachtung nicht unterschieden werden. Es ergibt sich:

$$C_0 = \frac{2}{\sqrt{3}}, \quad C_2 = -\frac{4\sqrt{2}}{5\sqrt{3}} \quad (31)$$

Bei der Wahl der Koordinatensysteme Σ, Σ' entsprechend Abb. III sind die Eulerschen Winkel:

$$\alpha = -\frac{\pi}{2}, \quad \beta = +\frac{\pi}{2}, \quad \gamma$$

Die Signalfunktion ist nur noch abhängig vom Winkel γ (Stellung des Polarisators).

$$\mu(\gamma) = \frac{4}{15} \left(\frac{5}{4} - (1-3\cos^2\gamma)u_{2,0} + \sqrt{6}(\sin 2\gamma u_{2,1} + \sin^2\gamma u_{2,2}) \right)$$

Polarisatorstellung:

a) $\gamma = 0$:

$$\mu = \frac{8}{15} \left(\frac{5}{8} + u_{2,0} \right)$$

b) $\gamma = \frac{\pi}{4}$:

$$\mu = \frac{2}{15} \left(\frac{5}{2} + u_{2,0} + 2\sqrt{6}u_{2,1} + \sqrt{6}u_{2,2} \right)$$

c) $\gamma = \frac{\pi}{2}$:

$$\mu = \frac{4}{15} \left(\frac{5}{4} - u_{2,0} + \sqrt{6}u_{2,2} \right)$$

Streulichtsignale

Die Streulichtmessungen beschränkten sich auf die Polarisatorstellungen $\gamma = 0$.

$$S_{em} \sim \frac{NP_b}{T_s} \mu(0) = \frac{NP_b}{T_s} \frac{8}{15} \left(\frac{5}{8} + u_{2,0}^{(b)} \right)$$

Für $u_{2,0}^{(b)}$ gilt im stationären Fall:

$$u_{2,0}^{(b)} = - \frac{T_s}{5T_p P_b} (1 + u_{2,0}^{(a)}) \quad (11, A 25)$$

$$\text{mit: } P_b = \frac{T_s}{T_p} (1 - \frac{4}{5} u_{2,0}^{(a)}) \quad (11, C.3)$$

$$\text{daher: } S_{em} \sim \frac{N}{T_p} (17 - 28 u_{2,0}^{(a)})$$

$$\sim \frac{N}{T_p} (1 - 1,647 u_{2,0}^{(a)})$$

Für nicht zu starke Wechselfelder ($H_1(t) = H_1 \cos \omega t \cdot \vec{e}_x$) ist $u_{2,0}^{(a)} \approx a_0(\omega)$ (s. Gleichung A 7).

Zur Messung der Relaxationszeit τ_0 wird das H_1 -Feld ausgeschaltet. Entsprechend (A 5, $\chi = 0$) gilt dann die Lösung: $u_{2,0}^{(a)}(t) = u_{2,0}^{(a)}(0) \cdot \exp(-t/\tau_0) + \frac{\tau_0}{\theta}$

$$\begin{aligned} \text{d.h.: } S_{em} &\sim \frac{N}{T_p} (17 - 28 u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/\tau_0) - 28 \frac{\tau_0}{\theta}) \\ &\sim \frac{N}{T_p} (0,6071 - u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/\tau_0) - \frac{\tau_0}{\theta}) \end{aligned}$$

Tastlichtsignale

$$S_{trans.} \sim \frac{C}{T_p}, - \frac{N}{T_p} S^d(\gamma)$$

1) $\gamma = 0$ Diese Polarisatorstellung ist optimal für die Beobachtung der $u_{2,0}$ -Komponente.

$$S_{trans.} \sim \frac{C}{T_p}, - \frac{N}{3T_p} \left\{ 1 + \frac{8}{5} u_{2,0}^{(a)} \right\}$$

Für schwaches H_1 -Feld gilt im stationären Fall:

$$u_{2,0}^{(a)}(\omega) \approx a_0(\omega).$$

Zur direkten Messung der Relaxationszeit wird ohne H_1 -Feld gepumpt und dann das Pumplicht ausgeschaltet. Das beobach-

tete Signal ist:

$$S_{\text{trans.}}(t) \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{3T_p} \left\{ 1 + \frac{8}{5} \left(u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/\tau_0) + \frac{z_0}{\theta} \right) \right\}$$

Für $T_p \gg T_0$:

$$S_{\text{trans.}}(t) \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{3T_p} \left\{ 1 + \frac{8}{5} \left(u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/T_0) + \frac{4}{25} \frac{T_0}{T_p} \right) \right\}$$

2) $\chi = \frac{\pi}{4}$: Diese Polarisatorstellung ist optimal für die Beobachtung der $u_{2,1}^{(a)}$ -Komponente.

$$S_{\text{trans.}} \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{T_p} \cdot \frac{2}{15} \left(\frac{5}{2} + u_{2,0}^{(a)} + 2\sqrt{6} u_{2,1}^{(a)} + \sqrt{6} u_{2,2}^{(a)} \right)$$

Unter dieser Winkelstellung sind drei Signalanteile enthalten ($u_{2,0}^{(a)}$, $u_{2,1}^{(a)}$, $u_{2,2}^{(a)}$).

$u_{2,1}^{(a)}$ ist mit der Kreisfrequenz ω_0 , $u_{2,2}^{(a)}$ mit $2\omega_0$ moduliert. Prinzipiell könnten bei dieser Polarisatorstellung alle Signalanteile simultan gemessen werden. (Durch Trennung in Gleichstromanteil und Modulationsanteile mit selektiver Verstärkung der Frequenz ν_0 bzw. $2\nu_0$). Bei schwachem H_1 -Feld (keine Sättigung) wird das Alignment teilweise zerstört (geschwächt), transversale Ausrichtungskomponenten $g_{2,1}^{(a)}$ und $g_{2,2}^{(a)}$ werden aufgebaut.

Bei gleichzeitigem Ausschalten des H_1 -Feldes und des Pumplichtes gilt dann für das Lastlichtsignal:

$$S_{\text{trans.}} \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{T_p} \cdot \frac{2}{15} \left\{ \frac{5}{2} + u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/T_0) + \frac{4}{25} \frac{T_0}{T_p} + 2\sqrt{6} \left(u_{2,1}^{(a)}(0) \cos \omega_0 t - v_{2,1}^{(a)}(0) \sin \omega_0 t \right) \exp(-t/T_1) + \sqrt{6} \left(u_{2,2}^{(a)}(0) \cos 2\omega_0 t - v_{2,2}^{(a)}(0) \sin 2\omega_0 t \right) \exp(-t/T_2) \right\}$$

$$\left(\frac{1}{T_p} \ll \frac{1}{T_\chi}, \chi = 0, 1, 2 \right)$$

Die mit ω_0 bzw. $2\omega_0$ modulierten Signalanteile lassen

sich darstellen als:

$$2\sqrt{6} \cdot A_{2,1}^{(0)} \sin(\omega_0 t + \varphi_1) \exp(-t/T_1)$$

$$\text{mit } A_{2,1}^{(0)} = \sqrt{u_{2,1}^2(0) + v_{2,1}^2(0)}$$

$$\text{und } \operatorname{tg} \varphi_1 = - \frac{u_{2,1}(0)}{v_{2,1}(0)}$$

$$\text{bzw.: } \sqrt{6} A_{2,2}^{(0)} \sin(2\omega_0 t + \varphi_2) \exp(-t/T_2)$$

$$\text{mit } A_{2,2}^{(0)} = \sqrt{u_{2,2}^2(0) + v_{2,2}^2(0)}$$

$$\text{und } \operatorname{tg} \varphi_2 = - \frac{u_{2,2}(0)}{v_{2,2}(0)}$$

d.h. :

$$S_{\text{trans.}} \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{T_p \cdot 15} \left\{ \frac{5}{2} + u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/T_0) + \frac{4}{25} \frac{T_0}{T_p} \right. \\ \left. + 2\sqrt{6} A_{2,1}^{(0)} \sin(\omega_0 t + \varphi_1) \exp(-t/T_1) \right. \\ \left. + 6 A_{2,2}^{(0)} \sin(2\omega_0 t + \varphi_2) \exp(-t/T_2) \right\}$$

Bei dieser Winkelstellung wäre - wie oben angedeutet - eine simultane Messung aller drei Relaxationszeiten T_0 , T_1 , T_2 prinzipiell möglich.

Optimale Signalamplituden und somit ein optimales Signal-zu-Rausch-Verhältnis erhält man jedoch für jeden Signalanteil bei einer anderen Polarisatoreinstellung.

3) $\gamma = \frac{\pi}{2}$: Diese Winkelstellung ist optimal für die Komponente $u_{2,2}^{(a)}$.

$$S_{\text{trans.}} \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{T_p \cdot 15} \left(\frac{5}{4} - u_{2,0}^{(a)} + \sqrt{6} u_{2,2}^{(a)} \right)$$

Bei Abschalten von Pumplicht und H_1 -Feld beobachtet man

ein Signal:

$$S_{\text{trans.}} \sim \frac{C}{T_p} - \frac{N}{T_p} \cdot \frac{4}{15} \left(\frac{5}{4} - u_{2,0}^{(a)}(0) \exp(-t/T_0) \right. \\ \left. + \sqrt{6} A_{2,2}(0) \sin(2\omega_0 t + \varphi_2) \exp(-t/T_2) \right)$$

$$\text{mit : } A_{2,2}^{(0)} = \sqrt{u_{2,2}^2(0) + v_{2,2}^2(0)}$$

$$\text{und } \text{tg } \varphi_2 = - \frac{u_{2,2}(0)}{v_{2,2}(0)}$$

Anteile der Tensorkomponenten $S_{1,x}^{(a)}$ würde man nur bei Zirkularpolarisation im Tastlicht beobachten können, sie werden jedoch bei unpolarisiertem longitudinalen Pumpen (Pumpricht in Richtung des H_0 -Feldes) nicht erzeugt.

Literaturverzeichnis

- (1) Bitter, F., Phys. Rev. 70, 460 (1949)
- (2) Brossel, J. et Kastler, A., Compt. Rend. 229, 1213 - 1215 (1949)
Kastler, A., Journ. Phys. Rad. 11, 255 - 265 (1950)
- (3) Brossel, J., Kastler, A., Winter, J., Journ. Phys. Rad. 13, 668 (1952)
- (4) Hawkins, W.B., Dicke, R.H., Phys. Rev. 91, 1008 (1953)
- (5) Barrat, J.P., Brossel, J., Kastler, A., Compt. Rend. 239, 1196 (1954)
- (6) Bernheim, R.A., Optical Pumping: An Introduction (Frontiers in Chemistry, W.A. Benjamin INC. N.Y., Amsterdam 1965)
- (7) Happer, W., Optical Pumping, Rev. mod. Phys. 44, (2), 169 (1972)
- (8) Bloom, A.L., Appl. Opt. 1, 61 (1962)
Dönzelmann, A., Baede, A.P.M., Overboom, E.J.M., Rozing, J.M., Appl. Sci. Res. 18, 61 (1967)
- (9) Cagnac, B., Ann. Phys. (Paris) 6, 467 (1961)
- (10) Capeller, U., Dellit, L., Phys. Lett. 26A, 535 (1968)
- (11) Dellit, L., Dissertation: Marburg 1969
- (12) Barrat, J.P. et Cohen-Tannoudji, C., Journ. Phys. Rad. 22, 443 (1961)
- (13) Capeller, U., Weber, H.G., Ann. Phys. (Leipzig) 7, Bd 26, 359 (1971)
- (14) Winter, J.M., Ann. Phys. (Paris) 4, 745 (1959)
- (15) Weber, H.G., Dissertation: Marburg 1971
- (16) Rabi, I.I., Ramsey, N.F., Schwinger, J., Rev. mod. Phys. 26, 167 (1954)
- (17) Dellit, L., wird in Kürze veröffentlicht
- (18) Franzen, W., Phys. Rev. 115, 850 (1959)
- (19) Dehmelt, H.G., Phys. Rev. 105, 1924 (1957)
Bouchiat, M.A., Journ. Phys. 26, 415
Cohen-Tannoudji, C. et Laloë, F., Journ. Phys. 28, 505 (1967)
- (20) Capeller, U., Dellit, L., Mazurkewitz, W., Exper. Techn. d. Phys. 20, 327 (1972)
- (21) Mazurkewitz, W., Dissertation: Marburg 1972

- (22) Cagnac, B. et Lemeignan, G., Compt. Rend. 258, 6119 (1964)
Bonnot, A.M., Cagnac, B., Compt. Rend. 274, 947 (1972)
- (23) Fano, U., Rev. mod. Phys. 29, 74 (1957)
- (24) Kohlrausch: Praktische Physik (Teubner)
- (25) Landolt Börnstein, Physikal. Chem. Tabellen, Bd.I, 1.Teil (1950)
- (26) Cohen-Tannoudji, C., Journ. Phys. 24, 653 (1963)
- (27) Happer, W., Phys. Rev. B1, 2203 (1970)
- (28) Kittel, Ch., Einführung in die Festkörperphysik (Oldenbourg/Wiley)
- (29) Rose, M.E., Elementary Theory of Angular Momentum (Wiley)
- (30) de Boer, J.H., The dynamic Charakter of Adsorption (Oxford Univers. Press N.Y. 1963)
- (31) Edmonds, A.R., Drehimpulse in der Quantenmechanik (B.I. Taschenbuch 53/53a)
- (32) Bouchiat, M.A., Masnou-Seeuws, F., Journ. Phys. 28, 406 (1967)
- (33) Krause, L., Skonieczny, J., Phys. Rev. A 9, 1612 (1974)
- (34) Kuhn, H., Proc. Roy. Soc 158 A, 230 (1937)
- (35) Bouchiat, M.A., Brossel, J., Phys. Rev. 147, 41 (1966)
- (36) Ramsey, N.F., Molecular Beams, Oxford, Clarendon Press, 1956
- (37) Baumgärtner/Schuck, Kernmodelle (B.I. Taschenbuch 203/203a)
- (38) McNeel, R.J., Bernheim, R.A., Bersohn, R., Dorfman, M., J. Chem. Phys. 40, 1978 (1964)
- (39) Herzberg, G., Spectra of Diatomic Molecules
- (40) Abragam, A., Principles of Nuclear Magnetism, Oxford, Clarendon Press, 1961
- (41) Ford, K.W., Wheeler, J.A., Ann. of Phys. (New York) 7, 259 (1959)
- (42) Purcell, E.M., Field, G.B., Astrophys. J. 124, 542 (1956)

Mein Dank gilt meinem Lehrer, Herrn Professor Dr. U. Cappeller, sowie Herrn Dr. L. Dellit für die Einführung in den Problembereich des optischen Pumpens, die Anteilnahme am Fortgang der Arbeit, für viele gute Ratschläge und die ständige Bereitschaft, Probleme zu diskutieren.

Herrn Dr. Dellit möchte ich auch für seine Unterstützung bei einigen Messungen und für die Überlassung eines Rechenprogrammes danken.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sei für die finanzielle Unterstützung des Forschungsvorhabens gedankt.

Weiterhin danke ich allen Arbeitern und Angestellten des Fachbereiches Physik der Universität Marburg, die durch ihre Tätigkeit zum Zustandekommen dieser Arbeit beigetragen haben.

Lebenslauf

Name: Rudolf Ostermann

geb.: 25.9. 1945 in Hannover

Eltern: Regierungsinspektor Ernst-August Ostermann und
Frau Paula Ostermann, geb. Klement

Schulbesuch: 1952 bis 1956 Volksschule in Hannover-Buchholz
1956 bis 1965 Leibniz-Schule in Hannover
(mathematisch-naturwissenschaftliches Gym-
nasium)
März 1965 Abitur

Bundeswehrdienstzeit: 1.4. 1965 bis 31.3. 1967

Studium: April 1967 Beginn des Studiums der Physik an
der Technischen Universität Hannover mit
Schwerpunkt Experimentalphysik,
Diplom im Juli 1972

Thema der Diplomarbeit: "Abhängigkeit des Nullfeld-Level-
crossing-Effektes von der spektralen Vertei-
lung des anregenden Lichtes"
(Über die Ergebnisse dieser Arbeit wurde auf
der DPG - Frühjahrstagung 1972 in Regensburg
berichtet. Der wesentliche Inhalt wurde zusam-
men mit D. Lecler, W. Lange und J. Luther in
Annales de Physique 1975 veröffentlicht.)

Tätigkeit nach dem Diplom: Vom 1. September 1972 bis zum
31. August 1976 als wissenschaftlicher Mit-
arbeiter am Fachbereich Physik der Philipps-
Universität Marburg/Lahn
Arbeitsgebiet: Optisches Pumpen, speziell
Untersuchung verschiedener Einflüsse auf
die Grundzustandsrelaxation beim Quecksilber

